3-Trifluormethylpicolinsäureanilide und ihre Verwendung als Fungizide

#### Beschreibung

20

25

30

35

Die vorliegende Erfindung betrifft 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide mit fungizider Wirksamkeit und ihre Verwendung als Fungizide, d.h. zur Bekämpfung von Schadpilzen.

Hetarylanilide mit fungizider Wirksamkeit sind Gegenstand zahlreicher Patentanmeldungen (siehe beispielsweise WO 86/02641, JP 01313402, US 4,877,441, EP 371950, WO 93/11117, EP 545099, DE 4204766, DE 4204768, EP 591699, EP 589301, JP 07145156, JP 08092223, WO 97/08148, WO 98/03500, EP 824099, EP 846416, WO 00/09482, WO 01/42223, EP 1110454, EP 1110956, WO 01/49664, JP 2001-302605, WO 02/08195, WO 02/08197, WO 02/38542, WO 02/59086, WO 02/064562, WO 03/010149, WO 03/66609, WO 03/66610, WO 03/69995, WO 03/74491 und WO 03/70705). Die dort beschriebenen Hetarylanilide können jedoch, insbesondere bei niedrigen Aufwandmengen, nicht in vollem Umfang zufrieden stellen.

Aus JP 58096069 sind fungizid wirksame Picolinsäureanilide der allgemeinen Formel

N N O

worin R für CH<sub>3</sub> oder CF<sub>3</sub> steht, bekannt. Die fungizide Wirksamkeit dieser Verbindungen ist jedoch nicht zufriedenstellend.

Der vorliegenden Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde weitere fungizid wirkende Verbindungen bereitzustellen, die die Nachteile der aus dem Stand der Technik bekannten Verbindungen überwinden und insbesondere eine verbesserte Wirkung bei niedrigen Aufwandmengen zeigen. Außerdem sollten diese Verbindungen eine gute Nutzpflanzenverträglichkeit aufweisen und möglichst keine oder nur eine geringe Schädlichkeit gegenüber tierischen Nützlingen zeigen.

Diese Aufgabe konnten gelöst werden durch die im Folgenden beschriebenen 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I und durch ihre landwirtschaftlich verträglichen Salze. Die vorliegende Erfindung betrifft daher 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I,

$$R^1$$
 $N$ 
 $N$ 
 $R^4$ 
 $X-R^5$ 
 $R^3$ 
 $(I)$ 

5

worin n für 0, 1, 2, 3 oder 4 steht und die Substituenten die folgende Bedeutung haben:

X O, S oder direkte Bindung;

10 W O oder S;

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Nitro, CN, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in den 4 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

15 R<sup>4</sup> Wasserstoff, OH, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in den 3 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

unsubstituiertes C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, wobei die 5 letztgenannten Gruppen jeweils 1, 2 oder 3 Substituenten R<sup>9</sup> aufweisen können, und wobei die Wasserstoffatome in den 5 letztgenannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können; C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, das 1, 2 oder 3 Substituenten R<sup>11</sup> aufweist.

eine Gruppe -C(R<sup>10</sup>)=NOR<sup>8</sup>, eine Gruppe -C(O)NR<sup>13</sup>R<sup>14</sup>;
Phenyl, Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, Phenyl-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkenyl, Phenyl-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkinyl,
Phenyloxy-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, Phenyloxy-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkenyl, Phenyloxy-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkinyl,
wobei der Alkyl-, Alkenyl- und der Alkinyl-Teil in den 6 zuletzt genannten
Gruppen 1, 2, 3 oder 4 Substituenten R<sup>11</sup> aufweisen kann und der Phenylring in den 7 zuletzt genannten Gruppen 1, 2, 3 oder 4 Reste R<sup>7</sup> tragen

kann;

R<sup>6</sup> die für R<sup>1</sup> genannten, von Wasserstoff verschiedenen Bedeutungen;

R<sup>7</sup> C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>- Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyloxy, wobei die Wasserstoffatome in diesen 7 Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein

können, OH, Halogen, Nitro, CN, C1-C4-Alkylthio, C1-C4-Alkylsulfonyl, -C(O)R<sup>12</sup>, NR<sup>13</sup>R<sup>14</sup>, -C(O)NR<sup>13</sup>R<sup>14</sup>, -C(S)NR<sup>13</sup>R<sup>14</sup>, -C(R<sup>10</sup>)=NOR<sup>8</sup>, Phenyl, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann, Phenoxy, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl-Phenyl, wobei die Wasserstoffatome des Alkylteils teilweise oder voll-5 ständig durch Halogen substituiert sein können und der Phenylring 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann, wobei zwei an benachbarte Kohlenstoffatome gebundene Reste R7 auch für CH=CH-CH=CH oder eine Alkylenkette mit 3 bis 5 Gliedern stehen können, worin 1 oder 2 nicht benachbarte CH2-Gruppen auch durch Sauerstoff oder 10 Schwefel ersetzt sein können und worin ein Teil oder alle Wasserstoffe durch Halogen ersetzt sein können; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl, wobei die Was- $R^8$ serstoffatome in diesen 4 Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können, 15 Phenyl oder Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, wobei Phenyl in den zwei letztgenannten Resten 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyloxy, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkinyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>- $R^9$ Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in diesen Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können; 20 Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_8$ -Alkoxy,  $C_2$ - $C_8$ -Alkenyloxy,  $C_2$ - $C_8$ -Alkinyloxy,  $R^{10}$  $C_1-C_4$ -Alkoxy- $C_1-C_8$ -alkoxy,  $C_1-C_{12}$ -Alkyl,  $C_3-C_{12}$ -Cycloalkyl,  $C_2-C_{12}$ -Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, wobei die Wasserstoffatome in den 9 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können; 25 Phenyl, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>7</sup> genannten Gruppen aufweisen  $C_1-C_4$ -Alkyl,  $C_1-C_8$ -Alkoxy,  $C_1-C_8$ -Alkoxy- $C_1-C_8$ -alkoxy,  $C_2-C_8$ -Alkenyloxy, R<sup>11</sup> C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkinyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in diesen Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein 30 können, oder Halogen; Wasserstoff, OH, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl,  $R^{12}$ C2-C4-Alkenyloxy, C2-C4-Alkinyloxy, C1-C4-Alkoxy-C1-C4-alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in den 7 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können; 35 unabhängig voneinander Wasserstoff, C1-C4-Alkyl, C2-C4-Alkenyl, C2-C4-R<sup>13</sup>. R<sup>14</sup> Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in diesen Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

40 und die landwirtschaftlich brauchbaren Salze von I.

WO 2005/063710 PCT/EP2004/014621

Die vorliegende Erfindung betrifft außerdem die Verwendung der 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I und deren landwirtschaftlich verträglich Salze als Fungizide sowie diese enthaltende Pflanzenschutzmittel.

5

15

Die vorliegende Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Bekämpfung von pflanzenpathogenen Pilzen (Schadpilzen), das dadurch gekennzeichnet ist, dass man die Schadpilze, deren Lebensraum oder die von ihnen freizuhaltenden Pflanzen, Flächen, Materialien oder Räume mit einer fungizid wirksamen Menge eines 3-

10 Trifluormethylpicolinsäureanilids der allgemeinen Formel I und/oder einem landwirtschaftlich verträglichen Salz von I behandelt.

Die 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der Formel I können je nach Art der Substituenten ein oder mehrere Chiralitätszentren aufweisen und liegen dann als Enantiomerenoder Diastereomerengemische vor. Gegenstand der Erfindung sind sowohl die reinen Enantiomere oder Diastereomere als auch deren Gemische. Geeignete Verbindungen der Formel I umfassen auch alle möglichen Stereoisomere (cis/trans-Isomere) und Gemische davon.

Unter landwirtschaftlich brauchbaren Salzen kommen vor allem die Salze derjenigen Kationen oder die Säureadditionssalze derjenigen Säuren in Betracht, deren Kationen beziehungsweise Anionen die fungizide Wirkung der Verbindungen I nicht negativ beeinträchtigen. So kommen als Kationen insbesondere die Ionen der Alkalimetalle, vorzugsweise Natrium und Kalium, der Erdalkalimetalle, vorzugsweise Calcium, Magnesium und Barium, und der Übergangsmetalle, vorzugsweise Mangan, Kupfer, Zink und Eisen, sowie das Ammoniumion, das gewünschtenfalls ein bis vier C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsubstituenten und/oder einen Phenyl- oder Benzylsubstituenten tragen kann, vorzugsweise Diisopropylammonium, Tetramethylammonium, Tetrabutylammonium, Trimethylbenzylammonium, des weiteren Phosphoniumionen, Sulfoniumionen, vorzugsweise
 Tri(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)sulfonium und Sulfoxoniumionen, vorzugsweise Tri(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)sulfoxonium, in Betracht.

Anionen von brauchbaren Säureadditionssalzen sind in erster Linie Chlorid, Bromid, Fluorid, Hydrogensulfat, Sulfat, Dihydrogenphosphat, Hydrogenphosphat, Phosphat, Nitrat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Hexafluorosilikat, Hexafluorophosphat, Benzoat, sowie die Anionen von C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkansäuren, vorzugsweise Formiat, Acetat, Propionat und Butyrat. Sie können durch Reaktion von I mit einer Säure des entsprechenden Anions, vorzugsweise der Chlorwasserstoffsäure, Bromwasserstoffsäure, Schwefelsäure, Phosphorsäure oder Salpetersäure, gebildet werden.

.. ..... ... ... ... ... ... ...

Bei den in den vorstehenden Formeln angegebenen Definitionen der Variablen werden Sammelbegriffe verwendet, die allgemein repräsentativ für die jeweiligen Substituenten stehen. Die Bedeutung C<sub>n</sub>-C<sub>m</sub> gibt die jeweils mögliche Anzahl von Kohlenstoffatomen in dem jeweiligen Substituenten oder Substituententeil an. Sämtliche Kohlenstoffketten, also alle Alkyl-, Halogenalkyl-, Phenylalkyl-, Alkenyl-, Halogenalkenyl-, Phenylalkenyl-, Alkinyl-, Halogenalkinyl- und Phenylalkinyl-Teile können geradkettig oder verzweigt sein. Halogenierte Substituenten tragen vorzugsweise ein bis fünf gleiche oder verschiedene Halogenatome. Die Bedeutung Halogen steht jeweils für Fluor, Chlor, Brom oder lod.

10

15

5

### Ferner stehen beispielsweise:

- C₁-C₄-Alkyl sowie die Alkylteile in Alkoxyalkyl, Alkylsulfonyl und Alkylthio für: CH₃,
   C₂H₅, CH₂-C₂H₅, CH(CH₃)₂, n-Butyl, CH(CH₃)-C₂H₅, CH₂-CH(CH₃)₂ oder
   C(CH₃)₃;
- C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl: für einen C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylrest wie vorstehend genannt, worin die Wasserstoffatome teilweise, z.B. 1, 2 oder 3, oder vollständig durch Halogen wie Fluor, Chlor, Brom und/oder lod, insbesondere durch Chlor und/oder Fluor und speziell durch Fluor substituiert sind, also z.B. CH<sub>2</sub>F, CHF<sub>2</sub>, CF<sub>3</sub>, CH<sub>2</sub>CI, CH(Cl)<sub>2</sub>, C(Cl)<sub>3</sub>, Chlorfluormethyl, Dichlorfluormethyl, Chlordifluormethyl, 2-Fluorethyl, 2-Chlorethyl, 2-Bromethyl, 2-Iodethyl, 2,2-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 2-Chlor-2-fluorethyl, 2-Chlor-2,2-difluorethyl, 2,2-Dichlor-2-fluorethyl, 2,2,2-Trichlorethyl, C<sub>2</sub>F<sub>5</sub>, 2-Fluorpropyl, 3-Fluorpropyl, 2,2-Difluorpropyl, 2,3-Difluorpropyl, 2-Brompropyl, 3-Brompropyl, 3-Chlorpropyl, 3-Chlorpropyl, 2,3-Dichlorpropyl, 2-Brompropyl, 3-Brompropyl, 3,3,3-Trifluorpropyl, 3,3,3-Trichlorpropyl, CH<sub>2</sub>-C<sub>2</sub>F<sub>5</sub>, CF<sub>2</sub>-C<sub>2</sub>F<sub>5</sub>, 1-(Fluormethyl)-2-fluorethyl, 1-(Chlormethyl)-2-chlorethyl, 4-Brombutyl oder Nonafluorbutyl;

30

C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl: für einen gesättigten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 12 C-Atomen, z.B. für einen C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylrest wie vorstehend genannt, oder für z.B. n-Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 2,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, n-Hexyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl oder 1-Ethyl-2-methylpropyl, vorzugsweise für CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, CH<sub>2</sub>-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, n-Butyl, C(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, n-Pentyl, n-Hexyl, n-Heptyl oder n-Octyl;

- C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl: für einen C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylrest wie vorstehend genannt, worin die Wasserstoffatome teilweise, z.B. 1, 2 oder 3, oder vollständig durch Halogen, insbesondere durch Chlor und/oder Fluor und speziell durch Fluor substituiert sind, also z.B. für einen der unter C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl genannten Reste oder für 5-Fluor-1-pentyl, 5-Chlor-1-pentyl, 5-Brom-1-pentyl, 5-lod-1-pentyl, 5,5,5-Trichlor-1-pentyl, Undecafluorpentyl, 6-Fluor-1-hexyl, 6-Chlor-1-hexyl, 6-Brom-1-hexyl, 6-Iod-1-hexyl, 6,6,6-Trichlor-1-hexyl oder Tridecafluorhexyl;
- C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl sowie die Alkenylteile in Alkenyloxy: ungesättigte, geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffreste mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen und einer Doppelbindung in einer beliebigen Position, z.B. Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Buten-1-yl, 1-Buten-2-yl, 1-Buten-3-yl, 2-Buten-1-yl, 1-Methyl-prop-1-en-1-yl, 2-Methyl-prop-1-en-1-yl, 1-Methyl-prop-2-en-1-yl, 2-Methyl-prop-2-en-1-yl;

C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkenyl: ungesättigte, geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffreste mit 2 bis 12 Kohlenstoffatomen und einer Doppelbindung in einer beliebigen Position, z.B. für C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl wie vorstehend genannt sowie z. B. für: n-Penten-1-yl, n-Penten-2-yl, n-Penten-3-yl, n-Penten-4-yl,

1-Methyl-but-1-en-1-yl, 2-Methyl-but-1-en-1-yl, 3-Methyl-but-1-en-1-yl, 1-Methyl-but-2-en-1-yl, 2-Methyl-but-2-en-1-yl, 3-Methyl-but-2-en-1-yl, 1-Methyl-but-3-en-1-yl, 2-Methyl-but-3-en-1-yl, 3-Methyl-but-3-en-1-yl, 1-Dimethyl-prop-2-en-1-yl, 1,2-Dimethyl-prop-1-en-1-yl, 1,2-Dimethyl-prop-2-en-1-yl, 1-Ethyl-prop-1-en-2-yl, 1-Ethyl-prop-2-en-1-yl,

n-Hex-1-en-1-yl, n-Hex-2-en-1-yl, n-Hex-3-en-1-yl, n-Hex-4-en-1-yl, n-Hex-5-en-1-yl, 1-Methyl-pent-1-en-1-yl, 2-Methyl-pent-1-en-1-yl, 3-Methyl-pent-1-en-1-yl, 1-Methyl-pent-2-en-1-yl, 2-Methyl-pent-2-en-1-yl, 1-Methyl-pent-2-en-1-yl, 1-Methyl-pent-3-en-1-yl, 2-Methyl-pent-3-en-1-yl, 3-Methyl-pent-3-en-1-yl, 3-Methyl-pent-3-en-1-yl, 1-Methyl-pent-3-en-1-yl, 2-Methyl-pent-3-en-1-yl, 3-Methyl-pent-3-en-1-yl, 1-Methyl-pent-3-en-1-yl, 1-Methyl-pe

4-Methyl-pent-3-en-1-yl, 1-Methyl-pent-4-en-1-yl, 2-Methyl-pent-4-en-1-yl, 3-Methyl-pent-4-en-1-yl, 4-Methyl-pent-4-en-1-yl, 1,1-Dimethyl-but-2-en-1-yl, 1,2-Dimethyl-but-1-en-1-yl, 1,2-Dimethyl-but-3-en-1-yl, 1,2-Dimethyl-but-3-en-1-yl, 1,3-Dimethyl-but-1-en-1-yl, 1,3-Dimethyl-but-2-en-1-yl,

35 1,3-Dimethyl-but-3-en-1-yl, 2,2-Dimethyl-but-3-en-1-yl, 2,3-Dimethyl-but-1-en-1-yl, 2,3-Dimethyl-but-2-en-1-yl, 3,3-Dimethyl-but-1-en-1-yl, 3,3-Dimethyl-but-1-en-1-yl, 1-Ethyl-but-1-en-1-yl, 1-Ethyl-but-

3,3-Dimethyl-but-2-en-1-yl, 1-Ethyl-but-1-en-1-yl, 1-Ethyl-but-2-en-1-yl, 1-Ethyl-but-3-en-1-yl, 2-Ethyl-but-1-en-1-yl, 2-Ethyl-but-2-en-1-yl,

40 2-Ethyl-but-3-en-1-yl, 1,1,2-Trimethyl-prop-2-en-1-yl,

1-Ethyl-1-methyl-prop-2-en-1-yl, 1-Ethyl-2-methyl-prop-1-en-1-yl oder 1-Ethyl-2-methyl-prop-2-en-1-yl;

- C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl sowie die Alkinylteile in Alkinyloxy: geradkettige oder verzweigte
   Kohlenwasserstoffgruppen mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen und einer Dreifachbindung in einer beliebigen Position, z.B. Ethinyl, 1-Propinyl, 2-Propinyl (=Propargyl), 1-Butinyl, 2-Butinyl, 3-Butinyl und 1-Methyl-2-propinyl;
- C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl: für geradkettige oder verzweigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 2 bis 12 Kohlenstoffatomen und einer Dreifachbindung in einer beliebigen Position, z.B. Ethinyl, Prop-1-in-1-yl, Prop-2-in-1-yl, n-But-1-in-1-yl, n-But-1-in-3-yl, n-But-1-in-3-yl, n-But-1-in-3-yl, n-Pent-1-in-3-yl, n-Pent-1-in-3-yl, n-Pent-1-in-3-yl, n-Pent-2-in-4-yl, n-Pent-2-in-5-yl, 3-Methyl-but-1-in-3-yl, 3-Methyl-but-1-in-4-yl, n-Hex-1-in-1-yl, n-Hex-1-in-3-yl, n-Hex-1-in-4-yl, n-Hex-2-in-1-yl, n-Hex-2-in-4-yl, n-Hex-2-in-1-yl, n-Hex-2-in-4-yl, n-Hex-3-in-1-yl, n-Hex-3-in-2-yl, 3-Methyl-pent-1-in-1-yl, 3-Methyl-pent-1-in-3-yl, 3-Methyl-pent-1-in-4-yl, a-Methyl-pent-1-in-5-yl, 4-Methyl-pent-1-in-1-yl, 4-Methyl-pent-2-in-4-yl und 4-Methyl-pent-2-in-5-yl;
- 20  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy: für OCH<sub>3</sub>, OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, OCH<sub>2</sub>- $C_2$ H<sub>5</sub>, OCH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, n-Butoxy, OCH(CH<sub>3</sub>)- $C_2$ H<sub>5</sub>, OCH<sub>2</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub> oder OC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>;
- C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy: für einen C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxyrest wie vorstehend genannt, worin ein Teil, z.B. 1, 2 oder 3 oder alle Wasserstoffatome durch Halogen, insbesonde-25 re durch Chlor und/oder Fluor und speziell durch Fluor substituiert sind, also z.B. OCH<sub>2</sub>F, OCH<sub>2</sub>, OCF<sub>3</sub>, OCH<sub>2</sub>CI, OCH(Cl)<sub>2</sub>, OC(Cl)<sub>3</sub>, Chlorfluormethoxy, Dichlorfluormethoxy, Chlordifluormethoxy, 2-Fluorethoxy, 2-Chlorethoxy, 2-Bromethoxy, 2-lodethoxy, 2,2-Difluorethoxy, 2,2,2-Trifluorethoxy, 2-Chlor-2-fluorethoxy, 2-Chlor-2,2-difluorethoxy, 2,2-Dichlor-2-fluorethoxy, 30 2,2,2-Trichlorethoxy, OC<sub>2</sub>F<sub>5</sub>, 2-Fluorpropoxy, 3-Fluorpropoxy, 2,2-Difluorpropoxy, 2,3-Difluorpropoxy, 2-Chlorpropoxy, 3-Chlorpropoxy, 2,3-Dichlorpropoxy, 2-Brompropoxy, 3-Brompropoxy, 3,3,3-Trifluorpropoxy, 3,3,3-Trichlorpropoxy,  $OCH_2-C_2F_5$ ,  $OCF_2-C_2F_5$ , 1-( $CH_2F$ )-2-fluorethoxy, 1-( $CH_2CI$ )-2-chlorethoxy, 1-(CH₂Br)-2-bromethoxy, 4-Fluorbutoxy, 4-Chlorbutoxy, 4-Brombutoxy o-35 der Nonafluorbutoxy, vorzugsweise für OCHF2, OCF3, Dichlorfluormethoxy, Chlordifluormethoxy oder 2,2,2-Trifluorethoxy;
  - C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl: für Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl;

C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl: für einen mono-, bi- oder tricylischen Kohlenwasserstoffrest, z.B. für einen C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkylrest wie vorstehend genannt oder für Cycloheptyl, Cyclooctyl, Bicyclo[2.2.1]heptyl, Bicyclo[2.2.2]octyl, Bicyclo[3.2.1]octyl, Bicyclo[3.3.0]octyl, Bicyclo[4.3.0]nonyl, Bicyclo[4.4.0]decyl oder Adamantyl;

5

- $C_3-C_{12}$ -Cycloalkyl- $C_1-C_4$ -alkyl: für  $C_1-C_4$ -Alkyl, welches mit  $C_3-C_{12}$ -Cycloalkyl substituiert ist, z.B. Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cycloheptylmethyl, Cyclooctylmethyl, 2-(Cyclopropyl)ethyl, 2-(Cyclobutyl)ethyl, 2-(Cyclopentyl)ethyl, 2-(Cyclohexyl)ethyl,
- 2-(Cycloheptyl)ethyl, 2-(Cyclooctyl)ethyl, 3-(Cyclopropyl)propyl, 10
  - 3-(Cyclobutyl)propyl, 3-(Cyclopentyl)propyl, 3-(Cyclohexyl)propyl,
  - 3-(Cycloheptyl)propyl, 3-(Cyclooctyl)propyl, 4-(Cyclopropyl)butyl,
  - 4-(Cyclobutyl)butyl, 4-(Cyclopentyl)butyl, 4-(Cyclohexyl)butyl,
  - 4--(Cycloheptyl)butyl, 4--(Cyclooctyl)butyl;

- $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl: für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, welches mit  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy substituiert ist, z.B. für Methoxymethyl, Ethoxymethyl, 1- oder 2-Methoxyethyl, 1- oder 2-Ethoxyethyl, 1-, 2- oder 3-Methoxypropyl;
- C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkoxy: für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, welches mit C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substitu-20 iert ist, z.B. für Methoxymethoxy, Ethoxymethoxy, 1- oder 2-Methoxyethoxy, 1oder 2-Ethoxyethoxy, 1-, 2- oder 3-Methoxypropoxy;
- Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl: für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, welches mit Phenyl substituiert ist, z.B. für Benzyl, 1- oder 2-Phenylethyl, 1-, 2- oder 3-Phenylpropyl; 25
  - Phenyloxy- $C_1$ - $C_6$ -alkyl: für  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl, welches mit Phenoxy, substituiert ist, z.B. für Phenoxymethyl, 1- oder 2-Phenoxyethyl, 1-, 2- oder 3-Phenoxypropyl;
- Phenyl- $C_2$ - $C_6$ -alkenyl: für  $C_2$ - $C_6$ -Alkenyl, welches mit Phenyl, substituiert ist, z.B. 30 für 1- oder 2-Phenylethenyl, 1-Phenylprop-2-en-1-yl, 3-Phenyl-1-propen-1-yl, 3-Phenyl-2-propen-1-yl, 4-Phenyl-1-buten-1-yl oder 4-Phenyl-2-buten-1-yl;
- Phenyloxy-C2-C6-alkenyl: für C2-C6-Alkenyl, welches mit Phenoxy, substituiert ist, z.B. für 1- oder 2-Phenyloxyethenyl, 1-Phenyloxyprop-2-en-1-yl, 3-Phenyloxy-1-35 propen-1-yl, 3-Phenyloxy-2-propen-1-yl, 4-Phenyloxy-1-buten-1-yl oder 4-Phenyloxy-2-buten-1-yl;
- Phenyl-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkinyl: für C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyl, welches mit Phenyl, substituiert ist, z.B. für 1-Phenylprop-2-in-1-yl, 3-Phenyl-1-propin-1-yl, 3-Phenyl-2-propin-1-yl, 4-40

30

Phenyl-1-butin-1-yl oder 4-Phenyl-2-butin-1-yl;

Phenyloxy-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkinyl: für C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyl, welches mit Phenoxy, substituiert ist,
 z.B. für 1-Phenyloxyprop-2-in-1-yl, 3-Phenyloxy-1-propin-1-yl, 3-Phenyloxy-2-propin-1-yl, 4-Phenyloxy-1-butin-1-yl oder 4-Phenyloxy-2-butin-1-yl.

Im Hinblick auf die fungizide Wirksamkeit sind Anilide der allgemeinen Formel I bevorzugt, worin die Variablen R¹ bis R<sup>6</sup> unabhängig voneinander und insbesondere in Kombination die folgenden Bedeutungen aufweisen:

- R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl. Insbesondere stehen 1, 2 oder bevorzugt alle Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> für Wasserstoff;
- R<sup>4</sup> Wasserstoff, Methyl, OH oder Methoxy, insbesondere Wasserstoff;
- R<sup>5</sup> eine der folgenden Bedeutungen:
- unsubstituiertes C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in den 4 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können und die Wasserstoffatome in C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl teilweise oder vollständig durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiert sein können;
  - C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl, insbesondere C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Fluoralkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, insbesondere C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Fluoralkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl;
  - Phenyl, Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, wobei der Phenylring mit 1, 2, 3 oder 4
    Resten R<sup>7</sup> substituiert sein kann und insbesondere 0, 1, 2 oder 3 Reste R<sup>7</sup> aufweist; oder
- C(C₁-C₄-Alkyl)=NO-R<sup>8</sup>, wobei die Wasserstoffatome der C₁-C₄-Alkylgruppe teilweise, z.B. 1-, 2- oder 3-fach oder vollständig durch Halogen substituiert sein können; und

unabhängig voneinander: C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, oder Halogen, speziell Fluor, Chlor, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy, Trifluormethoxy oder Difluormethyl.

Die Variable R<sup>7</sup> ist insbesondere ausgewählt unter C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, Nitro, CN oder Halogen, speziell Fluor, Chlor, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy, Trifluormethoxy oder Difluormethyl.

Die Variable R<sup>8</sup> ist vorzugsweise ausgewählt unter C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>- Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in diesen 5 Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können, Halogen, Nitro, CN, Phenyl, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann, Phenoxy, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylphenyl, wobei die Wasserstoffatome des Alkylteils teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können und der Phenylring 1, 2, 3 oder 4 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann, insbesondere unter C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>- Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in diesen 4 Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können, Phenyl oder Benzyl, wobei Phenyl in den zwei letztgenannten Resten 1, 2 oder 3 der unter R<sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann.

Im Hinblick auf ihre fungizide Wirksamkeit sind solche Anilide der Formel I bevorzugt, worin n = 0 ist.

25 Die Variable W steht insbesondere für Sauerstoff.

Im Hinblick auf die fungizide Wirksamkeit der Anilide I, steht X in Formel I für eine direkte Bindung oder Sauerstoff. In einer ersten besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung steht X für Sauerstoff. In einer anderen besonders bevorzugten Ausführungsform steht X für eine direkte Bindung. Sofern R<sup>5</sup> für unsubstituiertes Alkyl steht, ist X insbesondere eine direkte Bindung.

Im Hinblick auf ihre fungizide Wirksamkeit sind solche Anilide der Formel I bevorzugt, in denen die Gruppe X-R<sup>5</sup> in ortho- oder meta-Position und insbesondere in ortho35 Position zum Amidstickstoff gebunden ist. Hierunter sind besonders diejenigen Anilide der Formel I bevorzugt, in denen R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> jeweils für Wasserstoff stehen, und speziell solche mit n = 0. Hierunter sind solche Anilide besonders bevorzugt, in denen R<sup>5</sup> eine der folgenenden Bedeutungen aufweist.

15

- unsubstituiertes C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in den 4 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können und die Wasserstoffatome in C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl teilweise oder vollständig durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiert sein können;
- C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl, insbesondere C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Fluoralkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, insbesondere C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Fluoralkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl;
- Phenyl, Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, wobei der Phenylring mit 1, 2, 3 oder 4 Resten R<sup>7</sup> substituiert sein kann und insbesondere 0, 1, 2 oder 3 Reste R<sup>7</sup> aufweist; oder
  - -C(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl)=NO-R<sup>8</sup>, wobei die Wasserstoffatome der C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylgruppe teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können.

Hierbei haben R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> insbesondere die als bevorzugt angegebenen Bedeutungen, W steht insbesondere für Sauerstoff.

Insbesondere sind im Hinblick auf ihre Verwendung als Fungizide und Wirkstoffe zur Bekämpfung von Schädlingen die in den folgenden Tabelle 1 bis 6 zusammengestellten Einzelverbindungen bevorzugt, die unter die allgemeinen Formeln la, Ib und Ic fallen, wobei Verbindungen der allgemeinen Formel la besonders bevorzugt sind.

#### Tabelle A

| Nr. | R <sup>5</sup>                     |
|-----|------------------------------------|
| 1.  | Cyclopropyl                        |
| 2.  | n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>    |
| 3.  | s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>    |
| 4.  | i–C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>    |
| 5.  | t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>    |
| 6.  | n-C <sub>5</sub> H <sub>11</sub>   |
| 7.  | i-C <sub>5</sub> H <sub>11</sub>   |
| 8.  | neo-C <sub>5</sub> H <sub>11</sub> |
| 9.  | Cyclopentyl                        |
| 10. | n–C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>   |
| 11. | Cyclohexyl                         |
| 12. | Cyclobutyl                         |
| 13. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CI |

| Nr.   | R⁵                                   |
|-------|--------------------------------------|
| 14.   | (CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> Cl   |
| 15.   | 2-Methoxyeth-1-yl                    |
| 16.   | 2-Ethoxyeth-1-yl                     |
| 17.   | 2-Isopropoxyeth-1-yl                 |
| 18.   | 2–Vinyloxyeth–1–yl                   |
| 19.   | Allyloxyeth–1–yl                     |
| 20.   | 2-Trifluormethoxyeth-1-yl            |
| 21.   | Prop-2-in-1-yl                       |
| 22.   | But-2-in-1-yl                        |
| 23.   | But-3-in-1-yl                        |
| 24.   | 3-Chlorprop-2-in-1-yl                |
| 25.   | Benzyl                               |
| 26.   | 1–Naphthyl–CH₂                       |
| 27.   | 2-NaphthylCH <sub>2</sub>            |
| 28.   | 2-Phenoxyeth-1-yl                    |
| 29.   | 2–(2'–Chlorphenoxy)eth–1–yl          |
| 30.   | 2-(3'-Chlorphenoxy)eth-1-yl          |
| 31.   | 2-(4'-Chlorphenoxy)eth-1-yl          |
| 32.   | 2(3',5'-Dichlorphenoxy)eth-1-yl      |
| 33.   | 2-(2'-Cyanophenoxy)eth-1-yl          |
| 34.   | 2-(3'-Cyanophenoxy)eth-1-yl          |
| 35.   | 2-(4'-Cyanophenoxy)eth-1-yl          |
| 36.   | 2-(2'-Methylphenoxy)eth-1-yl         |
| 37.   | 2-(3'-Methylphenoxy)eth-1-yl         |
| 38.   | 2(4'-Methylphenoxy)eth-1yl           |
| 39.   | 2-(3'-t-Butylphenoxy)eth-1-yl        |
| 40.   | 2–(4'-t–Butylphenoxy)eth–1-yl        |
| 41.   | 2-(2'-Nitrophenoxy)eth-1-yl          |
| 42.   | 2-(3'-Nitrophenoxy)eth-1-yl          |
| 43.   | 2-(4'-Nitrophenoxy)eth-1-yl          |
| 44.   | 2–(2'–Methoxyphenczy)ett.–1–yl       |
| 45.   | 2-(3'-Methoxyphenoxy)eth-1-yl        |
| 46.   | 2-(4'-Methoxyphenoxy)eth-1-yl        |
| 47.   | 2-(2'-Trifluormethylphenoxy)eth-1-yl |
| 48.   | 2–(3'–Trifluormethylphenoxy)eth–1–yl |
| 49.   | 2-(4'-Trifluormethylphenoxy)eth-1-yl |
| . 50. | 2-Phenyleth-1-yl                     |

| Nr. | R <sup>5</sup>                                       |
|-----|--|
| 51. | 2-(2'-Chlorphenyl)eth-1-yl                           |
| 52. | 2-(3'-Chlorphenyl)eth-1-yl                           |
| 53. | 2-(4'-Chlorphenyl)eth-1-yl                           |
| 54. | 2-(3',5'-Dichlorphenyl)eth-1-yl                      |
| 55. | 2-(2'-Cyanophenyl)eth-1-yl                           |
| 56. | 2-(3'-Cyanophenyl)eth-1-yl                           |
| 57. | 2-(4'-Cyanophenyl)eth-1-yl                           |
| 58. | 2-(2'-Methylphenyl)eth-1-yl                          |
| 59. | 2-(3'-Methylphenyl)eth-1-yl                          |
| 60. | 2-(4'-Methylphenyl)eth-1-yl                          |
| 61. | 2-(2'-Methoxyphenyl)eth-1-yl                         |
| 62. | 2–(3'–Methoxyphenyl)eth–1–yl                         |
| 63. | 2-(4'-Methoxyphenyl)eth-1-yl                         |
| 64. | 2-(2'-Trifluormethylphenyl)eth-1-yl                  |
| 65. | 2-(3'-Trifluormethylphenyl)eth-1-yl                  |
| 66. | 2-(4'-Trifluormethylphenyl)eth-1-yl                  |
| 67. | C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>                        |
| 68. | 2-F-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 69. | 3-F-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 70. | 4-F-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 71. | 2,3-F <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>    |
| 72. | 2,4-F <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>    |
| 73. | 2,5–F <sub>2</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>    |
| 74. | 2,6-F <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>    |
| 75. | 3,4-F <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>    |
| 76. | 3,5-F <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>    |
| 77. | 2-CI-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                   |
| 78. | 3CI-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 79. | 4-CI-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                   |
| 80. | 2,3-Cl <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 81. | 2,4Cl <sub>2</sub> C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>     |
| 82. | 2,5–Cl <sub>2</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 83. | 2,6-Cl <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 84. | 3,4-Cl <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 85. | 3,5-Cl <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 86. | 2,3,4–Cl <sub>3</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>2</sub> |
| 87. | 2,3,5-Cl <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>2</sub> |

| Nr.  | R <sup>5</sup>                                       |
|------|--|
| 88.  | 2,3,6-Cl <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>2</sub> |
| 89.  | 2,4,5Cl <sub>3</sub> C <sub>6</sub> H <sub>2</sub>   |
| 90.  | 2,4,6-Cl <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>2</sub> |
| 91.  | 3,4,5-Cl <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>2</sub> |
| 92.  | 2-Br-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                   |
| 93.  | 3-Br-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                   |
| 94.  | 4-BrC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 95.  | 2,3-Br <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 96.  | 2,4-Br <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 97.  | 2,5-Br <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 98.  | 2,6-Br <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 99.  | 3,4-Br <sub>z</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 100. | 3,5-Br <sub>z</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 101. | 2-F, 3-CI-C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 102. | 2-F, 4-CI-C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 103. | 2–F, 5–CI–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 104. | 2–F, 3–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 105. | 2–F, 4–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 106. | 2–F, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 107. | 2–CI, 3–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 108. | 2–CI, 4–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 109. | 2–CI, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 110. | 3–F, 4–Cl–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 111. | 3–F, 5–CI–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 112. | 3–F, 6–CI–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 113. | 3-F, 4-Br-C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 114. | 3–F, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 115. | 3–F, 6–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 116. | 3–Cl, 4–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 117. | 3–CI, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 118. | 3–CI, 6–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 119. | 4–F, 5–Cl–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 120. | 4–F, 6–CI–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 121. | 4–F, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 122. | 4–F, 6–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |
| 123. | 4–Cl, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>             |
| 124. | 5-F, 6-CI-C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>              |

| <br>Nr. | R <sup>5</sup>   |
|---------|--|
| 125.    | 5–F, 6–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>  |
| 126.    | 5–CI, 6–Br–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 127.    | 3–Br, 4–Cl, 5–Br–C <sub>6</sub> H <sub>2</sub>   |
| 128.    | 2CNC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 129.    | 3-CN-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 130.    | 4-CN-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 131.    | 2-NO <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 132.    | 3-NO <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 133.    | 4-NO <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 134.    | 2-CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 135.    | 3-CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 136.    | 4-CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |
| 137.    | 2,3-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 138.    | 2,4–(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 139.    | 2,5–(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 140.    | 2,6-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 141.    | 3,4-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 142.    | 3,5-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 143.    | 2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                           |
| 144.    | 3-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                           |
| 145.    | 4-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                           |
| 146.    | 2-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                         |
| 147.    | 3-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                         |
| 148.    | 4-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                         |
| 149.    | 3-tertC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 150.    | 4-tertC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 151.    | 2–Vinyl–C <sub>6</sub> H₄  |
| 152.    | 3-Vinyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 153.    | 4-Vinyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 154.    | 2-Allyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 155.    | 3-Allyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 156.    | 4-Allyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 157.    | $2-C_6H_5-C_6H_4$  |
| 158.    | 3-C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                           |
| 159.    | 4-C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                           |
| 160.    | 3–CH <sub>3</sub> , 5–tert.–C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> |
| 161.    | 2-OH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>   |

| Nr.  | R <sup>5</sup>  |
|------|---|
| 162. | 3-OH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                                    |
| 163. | 4-OH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                                    |
| 164. | 2-OCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 165. | 3-OCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 166. | 4-OCH <sub>3</sub> C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 167. | 2,3-(OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 168. | 2,4–(OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 169. | 2,5–(OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 170. | 3,4-(OCH <sub>3</sub> ) <sub>Z</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 171. | 3,5-(OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>   |
| 172. | 3,4,5–(OCH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>2</sub> |
| 173. | 2-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>       |
| 174. | 3-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>       |
| 175. | 4-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>       |
| 176. | 2-O-(n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 177. | 3-O-(n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 178. | 4-O-(n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 179. | 2-O-(i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 180. | 3-O-(i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 181. | 4-O-(i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 182. | 4-O-(n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 183. | $3-O-(t-C_4H_9)-C_6H_4$   |
| 184. | 4-O-(t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> )-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 185. | 2-O-AllyI-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                               |
| 186. | 3-O-Allyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                               |
| 187. | 4-O-AllyI-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                               |
| 188. | 2-CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 189. | 3-CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 190. | 4-CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 191. | 2-Acetyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                                |
| 192. | 3–Acetyl–C <sub>6</sub> H₄  |
| 193. | 4–Acetyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                                |
| 194. | 2–Methoxycarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 195. | 3–Methoxycarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 196. | 4–Methoxycarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 197. | 2-Aminocarbonyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                         |
| 198. | 3–Aminocarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                         |

| Nr.  | R <sup>5</sup>  |
|------|---|
| 199. | 4-Aminocarbonyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                         |
| 200. | 2–Dimethylaminocarbonyl–C <sub>6</sub> H₄                             |
| 201. | 3–Dimethylaminocarbonyl–C <sub>6</sub> H₄                             |
| 202. | 4–Dimethylaminocarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                 |
| 203. | 2–(N–Methylaminocarbonyl)–C₀H₄  |
| 204. | 3–(N–Methylaminocarbonyl)–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>               |
| 205. | 4–(N–Methylaminocarbonyl)–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>               |
| 206. | 2-H <sub>2</sub> N-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 207. | 3-H <sub>2</sub> N-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 208. | 4-H <sub>2</sub> N-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                      |
| 209. | 2–Aminothiocarbonyl–C <sub>6</sub> H₄                                 |
| 210. | 3–Aminothiocarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 211. | 4–Aminothiocarbonyl–C₀H₄  |
| 212. | 2-Methoxyiminomethyl-C <sub>6</sub> H₄                                |
| 213. | 3–Methoxyiminomethyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 214. | 4–Methoxyiminomethyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 215. | 3,4–Methylendioxy–C <sub>6</sub> H₃                                   |
| 216. | 3,4–Difluormethylendioxy–C <sub>6</sub> H₃                            |
| 217. | 2,3–Methylendioxy–C <sub>6</sub> H <sub>3</sub>                       |
| 218. | 2–(1'–Methoxyiminoeth–1'–yl)–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>            |
| 219. | 3–(1'–Methoxyiminoeth–1'–yl)–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>            |
| 220. | 4–(1'–Methoxyiminoeth–1'–yl)–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>            |
| 221. | 2-SCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 222. | 3-SCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 223. | 4-SCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 224. | 2-SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>      |
| 225. | 3-SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>      |
| 226. | 4-SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>      |
| 227. | 2-OCF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 228. | 3-OCF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 229. | 4-OCF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                     |
| 230. | 2-OCHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 231. | 3-OCHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 232. | 4-OCHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 233. | 3–CF <sub>3</sub> , 4–OCF <sub>3</sub> –C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> |
| 234. | 2–NHCH₃–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                                 |
| 235. | 3-NHCH₃-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                                 |

| Nr.  | R <sup>5</sup>  |
|------|---|
| 236. | 4-NHCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                |
| 237. | 2-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 238. | 3-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 239. | 4-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 240. | 2–Ethoxycarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 241. | 3–Ethoxycarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 242. | 4–Ethoxycarbonyl–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                    |
| 243. | 2-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F-C <sub>8</sub> H <sub>4</sub> |
| 244. | 3-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 245. | 4-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> FC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 246. | 2-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4.</sub> |
| 247. | 3-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 248. | 4-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>  |
| 249. | 2-CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 250. | 3-CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 251. | 4-CF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> |
| 252. | 2CHF <sub>2</sub> C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                   |
| 253. | 3-CHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                 |
| 254. | 4-CHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                 |
| 255. | 2-(1'-Oxo-n-prop-1-yl)-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>              |
| 256. | 3-(1'-Oxo-n-prop-1-yl)-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>              |
| 257. | 4–(1'-Oxo-n-prop-1-yl)–C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>              |
| 258. | 2-(1'-Oxo-iso-prop-1-yl)-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>            |
| 259. | 3-(1'-Oxo-iso-prop-1-yl)-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>            |
| 260. | 4-(1'-Oxo-iso-prop-1-yl)-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>            |
| 261. | 3-Cyclopropyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 262. | 4-Cyclopropyl-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                       |
| 263. | 4CyclohexylC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>                          |
| 264. | -C≡CH   |
| 265. | -C≡C-Cl   |
| 266. | -C≡C-Br   |
| 267. | -C≡C-CH <sub>3</sub>  |
| 268. | -C≡C-C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>                                |
| 269. | $-C \equiv C - [2 - Cl - C_6H_4]$                                 |
| 270. | $-C \equiv C-[4-Cl-C_6H_4]$                                       |
| 271. | $-C \equiv C-[2,4-Cl_2-C_6H_3]$                                   |
| 272. | $-C \equiv C-[2-CH_3-C_6H_4]$                                     |
| 273. | $-C \equiv C - [4 - CH_3 - C_6H_4]$                               |

| lr.  | R⁵  |
|------|---|
| 274. | $-C \equiv C-[2,4-(CH_3)_2-C_6H_3]$                               |
| 275. | -C≡C-[2-Cl, 4-CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> ]    |
| 276. | -C≡C-[2-CH <sub>3</sub> , 4-Cl-C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> ]    |
| 277. | $-C \equiv C - [3 - CF_3 - C_6H_4]$                               |
| 278. | -C≡C-[3-Cl, 5-CF <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> ]    |
| 279. | $-C \equiv C-[2-OCH_3-C_6H_4]$                                    |
| 280. | $-C \equiv C-[4-OCH_3-C_6H_4]$                                    |
| 281. | $-C \equiv C-[2,4-(OCH_3)_2-C_6H_3]$                              |
| 282. | -C ≡C-[2-Cl, 4-OCH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> ]  |
| 283. | -C ≡C-[2-OCH <sub>3</sub> , 4-Cl-C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> ]  |
| 284. | -C≡C-[3-OCHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> ]        |
| 285. | -C ≡C-[3-Cl, 5-OCHF <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>3</sub> ] |
| 286. | Cyclopentyl   |
| 287. | 1-CH <sub>3</sub> -cyclopentyl                                    |
| 288. | 2-CH <sub>3</sub> -cyclopentyl                                    |
| 289. | 3-CH <sub>3</sub> -cyclopentyl                                    |
| 290. | 2,3-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -cyclopentyl                  |
| 291. | 1-CI-cyclopentyl  |
| 292. | 2-CI-cyclopentyl  |
| 293. | 3-CI-cyclopentyl  |
| 294. | 2-CH <sub>3</sub> , 3-Cl-cyclopentyl                              |
| 295. | 2,3-Cl <sub>2</sub> -cyclopentyl                                  |
| 296. | cyclohexyl  |
| 297. | 1-CH₃-cyclohexyl  |
| 298. | 2-CH₃-cyclohexyl  |
| 299. | 3-CH <sub>3</sub> -cyclohexyl                                     |
| 300. | 2,3-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -cyclohexyl                   |
| 301. | 3,3-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -cyclohexyl                   |
| 302. | 1-CI-cyclohexyl   |
| 303. | 2-CI-cyclohexyl   |
| 304. | 3-CI-cyclohexyl   |
| 305. | 2-CH <sub>3</sub> , 3-Cl-cyclohexyl                               |
| 306. | 2,3-Cl <sub>2</sub> -cyclohexyl                                   |
| 307. | CH <sub>2</sub> -C ≡C-H   |
| 308. | CH <sub>2</sub> -C ≡C-Cl  |
| 309. | CH <sub>2</sub> -C ≡C-Br  |
| 310. | CH <sub>2</sub> -C ≡C-J   |
| 311. | CH <sub>2</sub> -C≡C-CH <sub>3</sub>                              |

| Nr   | R <sup>5</sup>  |
|------|---|
| 312. | CH <sub>2</sub> -C≡C-CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>    |
| 313. | $CH_2CH_2-C \equiv C-H$                                 |
| 314. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C≡C-Cl                 |
| 315. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C≡C-Br                 |
| 316. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C ≡C-J                 |
| 317. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C≡C-CH <sub>3</sub>    |
| 318. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C≡C-H  |
| 319. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C≡C-Cl |
| 320. | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -C≡C-Br                 |
| 321. | $CH_2CH_2CH_2-C \equiv C-J$                             |
| 322. | $CH_2CH_2CH_2-C \equiv C-CH_3$                          |
| 323. | CH(CH <sub>3</sub> )-C≡C-H                              |
| 324. | CH(CH <sub>3</sub> )-C≡C-Cl                             |
| 325. | CH(CH <sub>3</sub> )-C≡C-Br                             |
| 326. | CH(CH <sub>3</sub> )-C≡C-J                              |
| 327. | CH(CH <sub>3</sub> )-C≡C-CH <sub>3</sub>                |
| 328. | $-C \equiv C-[4-F-C_6H_4]$                              |
| 329. | n-Heptyl  |
| 330. | n-Octyl   |
| 331. | Vinyl   |
| 332. | 1-Methylvinyl   |
| 333. | 2-Methylvinyl   |
| 334. | Allyl   |
| 335. | 2-Methylallyl   |
| 336. | 2-Ethylallyl  |
| 337. | 1-Methylallyl   |
| 338. | 1-Ethylallyl,   |
| 339. | 1-Methyl-2-butenyl                                      |
| 340. | 1-Ethyl-2-butenyl                                       |
| 341. | 1-Isopropyl-2-butenyl                                   |
| 342. | 1-n-Butyl-2-butenyl                                     |
| 343. | 1-Methyl-2-pentyl                                       |
| 344. | 1,4-Dimethyl-2-pentenyl                                 |
| 345. | Propargyl   |
| 346. | 2-Butinyl   |
| 347. | 3-Butinyl   |
| 348. | 2-Cyclopentenyl   |
| 349. | 1-Cyclopentenyl   |

| Nr.  | R <sup>5</sup>   |
|------|--|
| 350. | 1-Cyclohexenyl   |
| 351. | 2-Cyclohexenyl   |
| 352. | -CH₂F  |
| 353. | -CHF <sub>2</sub>  |
| 354. | -CF <sub>3</sub>   |
| 355. | -CH <sub>2</sub> -CHF <sub>2</sub>   |
| 356. | -CH <sub>2</sub> -CF <sub>3</sub>  |
| 357. | -CHF-CF <sub>3</sub>   |
| 358. | -CF <sub>2</sub> -CHF <sub>2</sub>   |
| 359. | -CF <sub>2</sub> -CF <sub>3</sub>  |
| 360. | CH <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> -CHF <sub>2</sub>                             |
| 361. | CH <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> -CF <sub>3</sub>                              |
| 362. | CF <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> -CF <sub>3</sub>                              |
| 363. | -CF <sub>2</sub> -CHF-CF <sub>3</sub>  |
| 364. | -CH <sub>2</sub> (CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -CF <sub>3</sub>              |
| 365. | -CF <sub>2</sub> (CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -CF <sub>3</sub>              |
| 366. | -CH <sub>2</sub> (CF <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> -CF <sub>3</sub>              |
| 367. | -CF <sub>2</sub> (CF <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> -CF <sub>3</sub>              |
| 368. | -CF <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> OMethyl                                      |
| 369. | -CF <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> OEthyl                                       |
| 370. | CF <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> O-n-Propyl                                    |
| 371. | CF <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> O-n-Butyl                                     |
| 372. | -CF <sub>2</sub> -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> OMethyl                      |
| 373. | ~CF <sub>2</sub> -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> OEthyl                       |
| 374. | -CF <sub>2</sub> -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> O-n-Propyl                   |
| 375. | -CF <sub>2</sub> -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> O-n-Butyl                    |
| 376. | -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> O-(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> OMethyl     |
| 377. | -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -O-(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> OEthyl     |
| 378. | -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -O-(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> O-n-Propyl |
| 379. | -(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -O-(CF <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> O-n-Butyl  |
| 380. | -CH <sub>2</sub> -CHCl <sub>2</sub>  |
| 381. | -CH <sub>2</sub> -CCl <sub>3</sub>   |
| 382. | -CCl <sub>2</sub> -CHCl <sub>2</sub>   |
| 383. | -CH <sub>2</sub> CFCl <sub>2</sub>   |
| 384. | -CH <sub>2</sub> -CCIF <sub>2</sub>  |
| 385. | -CH <sub>2</sub> -CCl <sub>2</sub> -CCl <sub>3</sub>                           |
| 386. | -CH <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> -CHF-CF <sub>2</sub> -CCIF <sub>2</sub>      |
| 387. | Methoxyiminomethyl   |

| Nr.  | R⁵                                       |
|------|--|
| 388. | Ethoxyiminomethyl                        |
| 389. | iso-Propyloxyiminomethyl                 |
| 390. | Allyloxyiminomethyl                      |
| 391. | Phenoxyiminomethyl                       |
| 392. | Benzyloxyiminomethyl                     |
| 393. | 1-Methoxyimino-eth-1-yl                  |
| 394. | 1-Ethoxyimino-eth-1-yl                   |
| 395. | 1-iso-Propyloxyimino-eth-1-yl            |
| 396. | 1-Allyloxyimino-eth-1-yl                 |
| 397. | 1-Phenoxyimino-eth-1-yl                  |
| 398. | 1-Benzyloxyimino-eth-1-yl                |
| 399. | 2-Ethoxyiminomethyl-phenyl               |
| 400. | 3-Ethoxyiminomethyl-phenyl               |
| 401. | 4-Ethoxyiminomethyl-phenyl               |
| 402. | 2-(1-Ethoxyimino-eth-1-yl)-phenyl        |
| 403. | 3-(1-Ethoxyimino-eth-1-yl)-phenyl        |
| 404. | 4-(1-Ethoxyimino-eth-1-yl)-phenyl        |
| 405. | 2-(1-Ethoxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl     |
| 406. | 3-(1-Ethoxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl     |
| 407. | 4-(1-Ethoxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl     |
| 408. | 2-(iso-Propyloxyiminomethyl)-phenyl      |
| 409. | 3-(iso-Propyloxyiminomethyl)-phenyl      |
| 410. | 4-(iso-Propyloxyiminomethyl)-phenyl      |
| 411. | 2-(1-iso-Propyloxyimino-eth-1-yl)-phenyl |
| 412. | 3-(1-iso-Propyloxyimino-eth-1-yl)-phenyl |
| 413. | 4-(1-iso-Propyloxyimino-eth-1-yl)-phenyl |
| 414. | 2-(1-Ethoxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl     |
| 415. | 3-(1-Ethoxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl     |
| 416. | 4-(1-Ethoxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl     |
| 417. | 2-(Allyloxyiminomethyl)-phenyl           |
| 418. | 3-(Allyloxyiminomethyl)-phenyl           |
| 419. | 4-(Allyloxyiminomethyl)-phenyl           |
| 420. | 2-(1-Allyloxyimino-eth-1-yl)-phenyl      |
| 421. | 3-(1-Allyloxyimino-eth-1-yl)-phenyl      |
| 422. | 4-(1-Allyloxyimino-eth-1-yl)-phenyl      |
| 423. | 2-(1-Allyloxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl   |
| 424. | 3-(1-Allyloxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl   |
| 425. | 4-(1-Allyloxyimino-n-prop-1-yl)-phenyl   |

#### Tabelle 1:

Verbindungen der allgemeinen Formel la;

$$\begin{array}{c|c}
 & O \\
 & N \\$$

worin X eine direkte Bindung ist und R<sup>5</sup> eine in Tabelle A angegebene Bedeutung aufweist.

# Tabelle 2:

10

Verbindungen der allgemeinen Formel Ia, worin X für O steht und  $\mathsf{R}^5$  eine in der Tabel-Ie A angegebene Bedeutung aufweist.

#### Tabelle 3:

15

Verbindungen der allgemeinen Formel lb,

$$X R^5$$
 (lb)

worin X eine direkte Bindung ist und R<sup>5</sup> eine in der Tabelle A angegebene Bedeutung 20 aufweist.

#### Tabelle 4:

Verbindungen der allgemeinen Formel Ib, worin X für O steht und R⁵ eine in der Tabel-25 le A angegebene Bedeutung aufweist.

#### Tabelle 5:

Verbindungen der allgemeinen Formel Ic,

$$\begin{array}{c|c}
S & & \\
N & & \\
CF_3 & & \\
R^5
\end{array}$$
(Ic)

worin X eine direkte Bindung ist und R<sup>5</sup> eine in der Tabelle A angegebene Bedeutung aufweist.

#### Tabelle 6:

5

Verbindungen der allgemeinen Formel Ic, worin X für O steht und R⁵ eine in der Tabelle A angegebene Bedeutung aufweist.

Die 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I mit W = O und R<sup>4</sup> = H können gemäß der in Schema 1 gezeigten Synthese nach literaturbekannten Verfahren durch Umsetzung aktivierter 3-Trifluormethylpicolinsäurederivate der allgemeinen Formel II mit einem Anilin III hergestellt werden [Houben-Weyl: "Methoden der organ.
 Chemie", Georg-Thieme-Verlag, Stuttgart, New York 1985, Band E5, S. 941-1045.]. Aktivierte Carbonsäurederivate sind beispielsweise Halogenide, Aktivester, Anhydride, Azide, z.B. Chloride, Fluoride, Bromide, para-Nitrophenylester, Pentafluorphenylester, N-Hydroxysuccinimidester und Hydroxybenzotriazol-1-yl-ester.

#### 20 Schema 1:

25

In Schema 1 steht L für eine geeignete nucleophil verdrängbare Abgangsgruppe, beispielsweise für Halogenid, Aktivester-Rest, einen Anhydrid-Rest, Azid, z.B. Chlorid, Fluorid, Bromid, para-Nitrophenyloxy, Pentafluorphenyloxy, einen von N-Hydroxysuccinimid oder von Hydroxybenzotriazol-1-yl abgeleiteten Rest.

Die 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I können außerdem durch Umsetzung der freien Säuren IIa mit einem gegebenenfalls N-substituierten Anilin IIIa in Gegenwart eines Kupplungsreagenzes hergestellt werden (Schema 2).

#### 5 Schema 2:

15

20

25

Kupplungsreagenzien können beispielsweise sein:

- Kupplungsreagenzien auf Carbodiimid-Basis, z.B. N,N'-Dicyclohexylcarbodiimid
   [J.C. Sheehan, G.P. Hess, J. Am. Chem. Soc. 1955, 77, 1067], N-(3-Dimethylaminopropyl)-N'-ethyl-carbodiimid;
  - Kupplungsreagenzien, die gemischte Anhydride mit Kohlensäureestern bilden,
     z.B. 2-Ethoxy-1-ethoxycarbonyl-1,2-dihydrochinolin [B. Belleau, G. Malek, J. Amer. Chem. Soc. 1968, 90, 1651.], 2-iso-Butyloxy-1-iso-butyloxycarbonyl-1,2-dihydrochinolin [Y. Kiso, H. Yajima, J. Chem. Soc., Chem. Commun. 1972, 942.];
  - Kupplungsreagenzien aus Phosphonium-Basis, z.B. (Benzotriazol-1-yloxy)-tris-(dimethylamino)-phosophonium-hexafluorophosphat [B. Castro, J.R. Domoy, G. Evin, C. Selve, Tetrahedron Lett. 1975, 14, 1219.], (Benzotriazol-1-yl-oxy)-tripyrrolidinophosphonium-hexafluorophosphat [J. Coste et.al., Tetrahedron Lett. 1990, 31, 205.];
  - Kupplungsreagenzien auf Uroniumbasis bzw. mit Guanidinium-N-oxid-Struktur, z.B. N,N,N',N'-Tetramethyl-O-(1H-benzotriazol-1-yl)-uronium-hexafluorophosphat [R. Knorr, A. Trzeciak, W. Bannwarth, D. Gillessen, Tetrahedron Lett. 1989, 30, 1927. ], N,N,N',N'-Tetramethyl-O-(benzotriazol-1-yl)-uronium-tetrafluoroborat, (Benzotriazol-1-yloxy)-dipiperidinocarbenium-hexafluorophosphat [S. Chen, J. Xu, Tetrahedron Lett. 1992, 33, 647.];
  - Kupplungsreagenzien, die Säurechloride bilden, z.B. Phosphorsäure-bis-(2-oxo-oxazolidid)-chlorid [J. Diago-Mesequer, Synthesis 1980, 547.].
  - Die 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I mit R<sup>4</sup> = ggf. mit Halogen substituiertem Alkyl oder ggf. mit Halogen substituiertem Cycloalkyl können durch Alkylierung der Amide I (worin R<sup>4</sup> = Wasserstoff ist und die gemäß Schema 1 oder 2 zugänglich sind) mit geeigneten Alkylierungsreagenzien in Gegenwart von Basen her-

gestellt werden. Verfahren hierzu sind bekannt, z.B. aus J. Am. Chem. Soc. 1952, 74, S.3121, Helv. Chim. Acta, 1974, 57, S 281, Synth. Commun. 1988, 18, S. 2011.

Die 3-Trifluormethylpicolinsäuren IIa können nach literaturbekannten Methoden hergestellt werden z.B. aus den entsprechenden Pyridin-2,3-dicarbonsäuren durch Umsetzung mit Schwefeltetrafluorid in Anlehnung an die in J. Fluorine Chem. 1993, 60, S. 233-237; JP 1980-5059135; US 4803205; oder Khim. Geterotsikl. Soedin 1994, S. 657-659; oder durch Einführung der Carboxylgruppe nach der in Eur. J. Org. Chem. 2002, S. 327-330.

10

35

5

Daraus sind die aktivierten Thiophencarbonsäurederivate II nach literaturbekannten Verfahren synthetisierbar [Houben-Weyl: "Methoden der organ. Chemie", Georg-Thieme-Verlag, Stuttgart, New York 1985, Band E5, S. 587-614, 633-772.]

- Die Aniline III und IIIa sind nach literaturbekannten Methoden synthetisierbar [Houben-Weyl: "Methoden der organ. Chemie", Georg-Thieme-Verlag, Stuttgart, New York, Band XI, Teil 1, S. 9-1005.]
- 3-Trifluormethylpicolinthioanilide der allgemeinen Formel I mit W = S können durch allgemein bekannte Schwefelungsverfahren aus den entsprechenden Aniliden der Formel I mit X = O hergestellt werden, beispielsweise durch Schwefelung mit P<sub>2</sub>S<sub>5</sub> nach J. Am. Chem. Soc. 1951, 73, S. 4988, durch Umsetzung mit Lawessons Reagenz nach Heterocycles 2002, 58, S. 203-212; oder Pharmazie 1999, 54 (9), S.645-650.
- Die 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I und ihre landwirtschaftlich verträglichen, d.h. brauchbaren Salze eignen sich als Fungizide. Sie zeichnen sich durch eine hervorragende Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum von pflanzenpathogenen Pilzen, insbesondere aus der Klasse der Ascomyceten, Deuteromyceten, Phycomyceten und Basidiomyceten, aus. Sie sind zum Teil systemisch wirksam und können im Pflanzenschutz als Blatt- und Bodenfungizide eingesetzt werden.

Besondere Bedeutung haben sie für die Bekämpfung einer Vielzahl von Pilzen an verschiedenen Kulturpflanzen wie Weizen, Roggen, Gerste, Hafer, Reis, Mais, Gras, Bananen, Baumwolle, Soja, Kaffee, Zuckerrohr, Wein, Obst- und Zierpflanzen und Gemüsepflanzen wie Gurken, Bohnen, Tomaten, Kartoffeln und Kürbisgewächsen, sowie an den Samen dieser Pflanzen.

Speziell eignen sie sich zur Bekämpfung folgender Pflanzenkrankheiten:

40 • Alternaria-Arten an Gemüse und Obst,

- Botrytis cinerea (Grauschimmel) an Erdbeeren, Gemüse, Zierpflanzen und Reben,
- Cercospora arachidicola an Erdnüssen,
- Erysiphe cichoracearum und Sphaerotheca fuliginea an Kürbisgewächsen,
- 5 Erysiphe graminis (echter Mehltau) an Getreide,
  - Fusarium- und Verticillium-Arten an verschiedenen Pflanzen,
  - Helminthosporium-Arten an Getreide,
  - Mycosphaerella-Arten an Bananen und Erdnüssen,
  - Phytophthora infestans an Kartoffeln und Tomaten,
- 10 Plasmopara viticola an Reben,
  - Podosphaera leucotricha an Äpfeln,
  - Pseudocercosporella herpotrichoides an Weizen und Gerste,
  - Pseudoperonospora-Arten an Hopfen und Gurken,
  - Puccinia-Arten an Getreide.
- 15 Pyricularia oryzae an Reis,
  - Rhizoctonia-Arten an Baumwolle, Reis und Rasen,
  - Septoria nodorum an Weizen,
  - Sphaerotheca fuliginea (Gurkenmehltau) an Gurken,
  - Uncinula necator an Reben,
- 20 Ustilago-Arten an Getreide und Zuckerrohr, sowie
  - Venturia-Arten (Schorf) an Äpfeln und Birnen.
  - Septoria Tritici
  - Pyrenophora-Arten
  - Leptosphaeria Nodorum
- 25 Rhynchosporium-Arten
  - Typhula-Arten

Die Verbindungen der Formel I eignen sich außerdem zur Bekämpfung von Schadpilzen wie *Paecilomyces variotii* im Materialschutz (z.B. Holz, Papier, Dispersionen für den Anstrich, Fasern bzw. Gewebe) und im Vorratsschutz.

Die Verbindungen der Formel I werden angewendet, indem man die Pilze oder die vor Pilzbefall zu schützenden Pflanzen, Saatgüter, Materialien oder den Erdboden mit einer fungizid wirksamen Menge der Wirkstoffe behandelt. Die Anwendung kann sowohl vor als auch nach der Infektion der Materialien, Pflanzen oder Samen durch die Pilze erfolgen.

Die fungiziden Mittel enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gew.-% Wirkstoff.

Die Aufwandmengen liegen bei der Anwendung im Pflanzenschutz je nach Art des gewünschten Effektes zwischen 0,01 und 2,0 kg Wirkstoff pro ha.

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 0,1 g, vorzugsweise 0,01 bis 0,05 g je Kilogramm Saatgut benötigt.

- Bei der Anwendung im Material- bzw. Vorratsschutz richtet sich die Aufwandmenge an Wirkstoff nach der Art des Einsatzgebietes und des gewünschten Effekts. Übliche Aufwandmengen sind im Materialschutz beispielsweise 0,001 g bis 2 kg, vorzugsweise 0,005 g bis 1 kg Wirkstoff pro Qubikmeter behandelten Materials.
- Die Verbindungen der Formel I können in die üblichen Formulierungen überführt werden, z.B. Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Stäube, Pulver, Pasten und Granulate. Die Anwendungsform richtet sich nach dem jeweiligen Verwendungszweck; sie soll in jedem Fall eine feine und gleichmäßige Verteilung der erfindungsgemäßen Verbindung gewährleisten.
- Die Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Verstrecken des Wirkstoffs mit Lösungsmitteln und/oder Trägerstoffen, gewünschtenfalls unter Verwendung von Emulgiermitteln und Dispergiermitteln, wobei im Falle von Wasser als Verdünnungsmittel auch andere organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden können. Als Hilfsstoffe kommen dafür im wesentlichen in Betracht: Lösungsmittel wie Aromaten (z.B. Xylol), chlorierte Aromaten (z.B. Chlorbenzole), Paraffine (z.B. Erdölfraktionen), Alkohole (z.B. Methanol, Butanol), Ketone (z.B. Cyclohexanon), Amine (z.B.Ethanolamin, Dimethylformamid) und Wasser; Trägerstoffe wie natürliche Gesteinsmehle (z.B. Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide) und synthetische Gesteinsmehle (z.B. hochdisperse Kieselsäure, Silikate); Emulgiermittel wie nichtionogene und anionische Emulgatoren (z.B. Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, Alkylsulfonate und Arylsulfonate) und Dispergiermittel wie Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.
- Als oberflächenaktive Stoffe kommen Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von Ligninsulfonsäure, Naphthalinsulfonsäure, Phenolsulfonsäure, Dibutylnaphthalinsulfonsäure,
  Alkylarylsulfonate, Alkylsulfate, Alkylsulfonate, Fettalkoholsulfate und Fettsäuren sowie
  deren Alkali- und Erdalkalisalze, Salze von sulfatiertem Fettalkoholglykolether, Kondensationsprodukte von sulfoniertem Naphthalin und Naphthalinderivaten mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der Naphtalinsulfonsäure mit
  Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctylphe-

10

15

30

nol, Octylphenol, Nonylphenol, Alkylphenolpolyglykolether, Tributylphenylpolyglykolether, Alkylarylpolyetheralkohole, Isotridecylalkohol, Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkylether, ethoxyliertes Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglykoletheracetal, Sorbitester, Ligninsulfitablaugen und Methylcellulose in Betracht.

Zur Herstellung von direkt versprühbaren Lösungen, Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen kommen Mineralölfraktionen von mittlerem bis hohem Siedepunkt, wie Kerosin oder Dieselöl, ferner Kohlenteeröle sowie Öle pflanzlichen oder tierischen Ursprungs, aliphatische, cyclische und aromatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Benzol, Toluol, Xylol, Paraffin, Tetrahydronaphthalin, alkylierte Naphthaline oder deren Derivate, Methanol, Ethanol, Propanol, Butanol, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Cyclohexanol, Cyclohexanon, Chlorbenzol, Isophoron, stark polare Lösungsmittel, z.B. Dimethylformamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, Wasser, in Betracht.

Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der wirksamen Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate, können durch
 Bindung der Wirkstoffe an feste Trägerstoffe hergestellt werden. Feste Trägerstoffe sind z.B. Mineralerden, wie Silicagel, Kieselsäuren, Kieselgele, Silikate, Talkum, Kaolin, Attaclay, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie z.B. Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und Nußschalenmehl, Cellulosepulver und andere feste Trägerstoffe.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,01 und 95 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,1 und 90 Gew.-% des Wirkstoffs. Die Wirkstoffe werden dabei in einer Reinheit von 90% bis 100%, vorzugsweise 95% bis 100% (nach NMR-Spektrum) eingesetzt.

# Beispiele für Formulierungen sind:

- 5 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden mit 95 Gew.-Teilen feinteiligem Kaolin innig vermischt. Man erhält auf diese Weise ein Stäubemittel, das 5 Gew.-% des Wirkstoffs enthält.
- 30 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden mit einer Mischung
   aus 92 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel und 8 Gew.-Teilen Paraffinöl,

35

40

das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprüht wurde, innig vermischt. Man erhält auf diese Weise eine Aufbereitung des Wirkstoffs mit guter Haftfähigkeit (Wirkstoffgehalt 23 Gew.-%).

- 5 III. 10 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in einer Mischung gelöst, die aus 90 Gew.-Teilen Xylol, 6 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-monoethanolamid, 2 Gew.-Teilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure und 2 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht (Wirkstoffgehalt 9 Gew.-%).
  - IV. 20 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in einer Mischung gelöst, die aus 60 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 30 Gew.-Teilen Isobutanol, 5 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 5Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht (Wirkstoffgehalt 16 Gew.-%).
- V. 80 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden mit 3 Gew.-Teilen des Natriumsalzes der Diisobutylnaphthalin-alpha-sulfonsäure, 10 Gew.-Teilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfit-Ablauge und 7 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel gut vermischt und in einer Hammermühle vermahlen (Wirkstoffgehalt 80 Gew.-%).
- VI. Man vermischt 90 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung mit 10 Gew.-25 Teilen N-Methyl-a-pyrrolidon und erhält eine Lösung, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist (Wirkstoffgehalt 90 Gew.-%).
- VII. 20 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden in einer Mischung gelöst, die aus 40 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 30 Gew.-Teilen Isobutanol, 20
  Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gew.-Teilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gew.-% des Wirkstoffs enthält.
  - VIII. 20 Gew.-Teile einer erfindungsgemäßen Verbindung werden mit 3 Gew.-Teilen des Natriumsalzes der Diisobutylnaphthalin-α-sulfonsäure, 17 Gew.-Teilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfit-Ablauge und 60 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel gut vermischt und in einer Hammermühle vermahlen. Durch feines Verteilen der Mischung in 20 000 Gew.-Teilen Wasser

erhält man eine Spritzbrühe, die 0,1 Gew.-% des Wirkstoffs enthält.

IX. 10 Gew.-Teile der erfindungsgemäßen Verbindung werden in 63 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 27 Gew.-Teilen Dispergiermittel (beispielsweise eine Mischung aus 50 Gew.-Teilen des Anlagerungsprodukts von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 50 Gew.-Teilen des Anlagerungsprodukts von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl) gelöst. Die Stammlösung wird anschließend durch Verteilen in Wasser auf die gewünschte Konzentration verdünnt, z.B. auf eine Konzentration im Bereich von 1 bis 100 ppm.

10

15

30

35

40

5

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, z.B. in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulvern, Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln, Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsformen richten sich ganz nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.

Wäßrige Anwendungsformen können aus Emulsionskonzentraten, Pasten oder netzbaren Pulvern (Spritzpulver, Öldispersionen) durch Zusatz von Wasser bereitet werden. Zur Herstellung von Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen können die Substanzen als solche oder in einem Öl oder Lösungsmittel gelöst, mittels Netz-, Haft-, Dispergieroder Emulgiermitttel in Wasser homogenisiert werden. Es können aber auch aus wirksamer Substanz Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel und eventuell Lösungsmittel oder Öl bestehende Konzentrate hergestellt werden, die zur Verdünnung mit Wasser geeignet sind.

Die Wirkstoffkonzentrationen in den anwendungsfertigen Zubereitungen können in größeren Bereichen variiert werden. Im allgemeinen liegen sie zwischen 0,0001 und 10%. Häufig reichen bereits geringe Wirkstoffmengen an Verbindung I in der anwendungsfertigen Zubereitung aus, z.B. 2 bis 200 ppm. Ebenso sind anwendungsfertige Zubereitungen mit Wirkstoffkonzentrationen im Bereich von 0,01 bis 1 % bevorzugt.

Die Wirkstoffe können auch mit gutem Erfolg im Ultra-Low-Volume-Verfahren (ULV) verwendet werden, wobei es möglich ist, Formulierungen mit mehr als 95 Gew.-% Wirkstoff oder sogar den Wirkstoff ohne Zusätze auszubringen.

Zu den Wirkstoffen können Öle verschiedenen Typs, Herbizide, Fungizide, andere Schädlingsbekämpfungsmittel, Bakterizide, gegebenenfalls auch erst unmittelbar vor der Anwendung (Tankmix), zugesetzt werden. Diese Mittel können zu den erfindungs-

gemäßen Mitteln im Gewichtsverhältnis 1:10 bis 10:1 zugemischt werden.

Die erfindungsgemäßen Mittel können in der Anwendungsform als Fungizide auch zusammen mit anderen Wirkstoffen vorliegen, der z.B. mit Herbiziden, Insektiziden,

- Wachstumsregulatoren, Fungiziden oder auch mit Düngemitteln. Beim Vermischen der Verbindungen I bzw. der sie enthaltenden Mittel in der Anwendungsform als Fungizide mit anderen Fungiziden erhält man in vielen Fällen eine Vergrößerung des fungiziden Wirkungsspektrums.
- Die folgende Liste von Fungiziden, mit denen die erfindungsgemäßen Verbindungen gemeinsam angewendet werden können, soll die Kombinationsmöglichkeiten erläutern, nicht aber einschränken:
- Schwefel, Dithiocarbamate und deren Derivate, wie Ferridimethyldithiocarbamat,
   Zinkdimethyldithiocarbamat, Zinkethylenbisdithiocarbamat, Manganethylenbisdithiocarbamat, Mangan-Zink-ethylendiamin-bis-dithiocarbamat, Tetramethylthiu-ramdisulfide, Ammoniak-Komplex von Zink-(N,N-ethylen-bis-dithiocarbamat),
   Ammoniak-Komplex von Zink-(N,N'-propylen-bis-dithiocarbamat), Zink-(N,N'-propylen-bis-dithiocarbamat),
- Nitroderivate, wie Dinitro-(1-methylheptyl)-phenylcrotonat, 2-sec-Butyl-4,6-dinitrophenyl-3,3-dimethylacrylat, 2-sec-Butyl-4,6-dinitrophenyl-isopropylcarbonat, 5-Nitro-isophthalsäure-di-isopropylester;
  - heterocyclische Substanzen, wie 2-Heptadecyl-2-imidazolin-acetat, 2,4-Dichlor-6-(o-chloranilino)-s-triazin, O,O-Diethyl-phthalimidophosphonothioat, 5-Amino-1-[bis-(dimethylamino)-phosphinyl]-3-phenyl-1,2,4- triazol, 2,3-Dicyano-1,4-dithioanthrachinon, 2-Thio-1,3-dithiolo[4,5-b]chinoxalin, 1-(Butylcarbamoyl)-2-benzimidazol-carbaminsäuremethylester, 2-Methoxycarbonylamino-benzimidazol, 2-(Furyl-(2))-benzimidazol, 2-(Thiazolyl-(4))-benzimidazol, N-
- (1,1,2,2-Tetrachlorethylthio)-tetrahydrophthalimid, N-Trichlormethylthiotetrahydrophthalimid, N-Trichlormethylthio-phthalimid,

25

- N-Dichlorfluormethylthio-N',N'-dimethyl-N-phenyl-schwefelsäure- diamid, 5-Ethoxy-3-trichlormethyl-1,2,3-thiadiazol, 2-Rhodanmethylthiobenzthiazol, 1,4-Dichlor-2,5-dimethoxybenzol, 4-(2-Chlorphenylhydrazono)-3-methyl-5-isoxazolon, Pyridin-2-thio-1-oxid, 8-Hydroxychinolin bzw. dessen Kupfersalz, 2,3-Dihydro-5carboxanilido-6-methyl-1,4-oxathiin, 2,3-Dihydro-5-carboxanilido-6-methyl-1,4oxathiin-4,4-dioxid, 2-Methyl-5,6-dihydro-4H-pyran-3-carbonsäure-anilid, 2-Methyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,5-Dimethyl-furan-3-
- carbonsäurecyclohexylamid, N-Cyclohexyl-N-methoxy-2,5-dimethyl-furan-3-carbonsäureamid, 2-Methyl-benzoesäure-anilid, 2-lod-benzoesäure-anilid, N-

Formyl-N-morpholin-2,2,2-trichlorethylacetal, Piperazin-1,4-diylbis-1-(2,2,2-trichlorethyl)-formamid, 1-(3,4-Dichloranilino)-1-formylamino-2,2,2trichlorethan, 2,6-Dimethyl-N-tridecyl-morpholin bzw. dessen Salze, 2,6-Dimethyl-N-cyclododecyl-morpholin bzw. dessen Salze, N-[3-(p-tert.-Butylphenyl)-2methylpropyl]-cis-2,6-dimethyl-morpholin, N-[3-(p-tert.-Butylphenyl)-

2-methylpropyl]-piperidin, 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-4-ethyl-1,3-dioxolan-2-yl-ethyl]-1H-1,2,4-triazol, 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-4-n-propyl-1,3-

dioxolan-2-yl-ethyl]-1H-1,2,4-triazol, N-(n-Propyl)-N-(2,4,6-trichlorphenoxyethyl)-N'-imidazol-yl-harnstoff, 1-(4-Chlorphenoxy)-3,3-dimethyl-1-(1H-1,2,4-triazol-1yl)-2-butanon, 1-(4-Chlorphenoxy)-3,3-dimethyl-1-(1H-

1,2,4-triazol-1-yl)-2-butanol, (2RS,3RS)-1-[3-(2-Chlorphenyl)-2-(4-fluorphenyl)oxiran-2-ylmethyl]-1H-1,2,4-triazol,  $\alpha$ -(2-Chlorphenyl)- $\alpha$ -(4-chlorphenyl)-5pyrimidin-methanol, 5-Butyl-2-dimethylamino-4-hydroxy-6-methyl-pyrimidin, Bis-(p-chlorphenyl)-3-pyridinmethanol, 1,2-Bis-(3-ethoxycarbonyl-2thioureido)-benzol, 1,2-Bis-(3-methoxycarbonyl-2-thioureido)-benzol,

15 Strobilurine wie Methyl-E-methoxyimino-[ $\alpha$ -(o-tolyloxy)-o-tolyl]acetat, Methyl-E-2-{2-[6-(2-cyanophenoxy)-pyrimidin-4-yloxy]-phenyl}-3-methoxyacrylat, Methyl-Emethoxyimino-[a-(2-phenoxyphenyl)]-acetamid, Methyl-E-methoxyimino-[a-(2,5dimethylphenoxy)-o-tolyl]-acetamid,

Anilinopyrimidine wie N-(4,6-Dimethylpyrimidin-2-yl)-anilin, N-[4-Methyl-6-(1-20 propinyl)-pyrimidin-2-yl]-anilin, N-[4-Methyl-6-cyclopropyl-pyrimidin-2-yl]-anilin,

Phenylpyrrole wie 4-(2,2-Difluor-1,3-benzodioxol-4-yi)-pyrrol-3-carbonitril,

Zimtsäureamide wie 3-(4-Chlorphenyl)-3-(3,4-dimethoxyphenyl)acrylsäuremorpholid,

sowie verschiedene Fungizide, wie Dodecylguanidinacetat, 25 3-[3-(3,5-Dimethyl-2-oxycyclohexyl)-2-hydroxyethyl]-glutarimid, Hexachlorbenzol, DL-Methyl-N-(2,6-dimethyl-phenyl)-N-furoyl(2)-alaninat, DL-N-(2,6-Dimethylphenyl)-N-(2'-methoxyacetyl)-alanin-methyl- ester, N-(2,6-Dimethylphenyl)-Nchloracetyl-D,L-2-aminobutyrolacton, DL-N-(2,6-Dimethylphenyl)-N-

(phenylacetyl)-alaninmethylester, 5-Methyl-5-vinyl-3-(3,5-dichlorphenyl)-2,4-30 dioxo-1,3-oxazolidin, 3-[3,5-Dichlorphenyl(-5-methyl-5-methoxymethyl]-1,3oxazolidin- 2,4-dion, 3-(3,5-Dichlorphenyl)-1-isopropylcarbamoylhydantoin, N-(3,5-Dichlorphenyl)-1,2-dimethylcyclopropan-1,2-dicarbonsäureimid, 2-Cyano-[N-(ethylaminocarbonyl)-2-methoximino]-acetamid, 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)pentyl]-1H-1,2,4-triazol, 2,4-Difluor- $\alpha$ -(1H-1,2,4-triazolyl-1-methyl)-35

benzhydrylalkohol, N-(3-Chlor-2,6-dinitro-4-trifluormethyl-phenyl)-5-trifluormethyl-3-chlor-2-aminopyridin, 1-((bis-(4-Fluorphenyl)-methylsilyl)-methyl)-1H-1,2,4triazol.

5

Herstellungsbeispiele:

Beispiel 1: 3-Trifluormethyl-picolinsäure-(ortho-cyclohexyl)-anilid:

- 3-Trifluormethylpyridin-2-carbonsäuremethylester: 5 1.1 66,8 g (0,4 mol) Pyridin-2,3-dicarbonsäure wurden in einem 0,5 l Autoklaven vorgelegt. Anschließend kondensierte man 120 g (6 mol) wasserfreien Fluorwasserstoff ein und presste 138,4 g (1,28 mol) Schwefeltetrafluorid auf. Man rührte 24 h bei 60 °C. Nach Entspannen gab man 150 ml Methanol in den Autoklaven und rührte anschließend 3 h bei 80°C unter Eigendruck. Nach Entspannen gab 10 man den Autoklaveninhalt auf 1000 g Eiswasser, stellte mit 40 gew.-%iger wässriger Kaliumhydroxid-Lösung alkalisch, wusch 3 mal mit 350 ml Methylenchlorid, trennte die Methylenchloridphase ab, wusch einmal mit 300 ml Wasser und trocknete anschließend die organische Phase mit Magnesiumsulfat. Nach Abdestillieren des Lösungsmittels im Vakuum erhielt man einen Rückstand, der im Va-15 kuum über eine 15 cm-Vigreuxkolonne destilliert wurde. Man erhielt 61,9 g der Titelverbindung als eine Fraktion bei 98-99°C (10 mbar) mit einer GC-Reinheit von 88,7%.
- 20 1<sub>H-NMR</sub> (DMSO-d<sub>6</sub>): 3,05 ppm (s, 3H, OMe); 7,85 ppm (m, 1H, Pyridin-H); 8,40 ppm (d, 1H, Pyridin-H); 8,95 ppm (d, 1H, Pyridin-H).
- 3-Trifluormethylpyridin-2-carbonsäure Kaliumsalz:
  20 g (0,086 mol) 88,7%iger 3-Trifluormethylpyridin-2-carbonsäuremethylester
  und 300 ml 20 gew.-%ige wässrige Kaliumhydroxid-Lösung wurden 6 h zum Rückfluss erhitzt. Anschließend stellte man mit wässriger Salzsäure auf pH=5 und engte zur Trockene ein. Der Rückstand wurde zweimal mit 400 ml Methanol ausgekocht. Die Methanol extrakte wurde gesammelt und im Vakuum zur Trockne eingeengt. Auf diese Weise erhielt man 20,2 g der Titelverbindung als Kaliumsalz.
  - <sup>1</sup>H-NMR (DMSO-d<sub>6</sub>): 7,3 ppm (m, 1H , Pyridin-H); 7,95 ppm (d, 1H, Pyridin-H); 8,6 ppm (d, 1H, Pyridin-H).
- 3-Trifluormethyl-picolinsäure-(ortho-cyclohexyl)-anilid:
   In 20 ml Dichlormethan wurden 600 mg ortho-Cyclohexylanilin und 1,04 g
   Triethylamin gelöst. Man gab 0,72 g 3-Trifluormethylpicolinsäurechlorid zu und rührte 14 h bei Raumtemperatur. Anschließend wurde die Reaktionsmischung je einmal mit wässrigem Natriumhydrogencarbonat und verdünnter Salzsäure und zweimal mit Wasser gewaschen. Die organische Phase wurde über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeengt. Nach chromatographischer Reinigung des

Rückstandes an Kieselgel mit einer Mischung aus Cyclohexan und Methyl-tertbutylether erhält man 740 mg der Zielverbindung mit einem Festpunkt von 111-116°C.

Die Verbindungen der Beispiele 2 bis 22 (Verbindungen der Formel I') wurden in analoger Weise hergestellt. Ihre physikochemischen Daten sind in Tabelle 7 zusammengestellt:

# Tabelle 7:

$$\begin{array}{c|c}
 & O \\
 & N \\$$

|      | O1 3  | m '41    | Fa atm conlet | Spektroskopische Daten   |
|------|---|----------|---------------|--|
| Bsp. | X-R <sup>5</sup>                                    | Position | Festpunkt     | Spektroskopische Bateit  |
| 1    | cyclo-Hexyl   | ortho    | 111-116°C     | IR [cm <sup>-1</sup> ]: 1703, 1587,  |
| 2    | -CH(CH₃)-CH₂-CH₃                                    | ortho    | ÖI            | 1576, 1521, 1452, 1433,<br>1314, 1298, 1157, 1129,<br>1067, 1034, 816, 808,<br>757.                                  |
| 3    | n-Pentyl  | ortho    | 68-73°C       |  |
| 4    | 4-Chlorphenyl                                       | ortho    | 132-136°C     |  |
| 5    | 4-Fluorphenyl                                       | ortho    | 114-117°C     |  |
| 6    | 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy                            | ortho    | 83-86°C       |  |
| 7    | cyclo-Pentyl  | ortho    | 117-122°C     |  |
| 8    | 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy                            | meta     | 89-90°C       |  |
| 9    | -OC(O)NH-tert-butyl                                 | meta     | 129-131°C     |  |
| 10   | n-Hexyloxy  | meta     | 59-60°C       | 12 12 12 12 12 12  |
| 11   | cyclo-Pentyloxy                                     | meta     | Öl            | IR [cm <sup>-1</sup> ]: 1697, 1607,<br>1590, 1577, 1531, 1493,<br>1448, 1434, 1418, 1315,<br>1188, 1165, 1127, 1034. |
| 12   | 2-Methyl-phenyl                                     | ortho    | 89-91°C       |  |
| 13   | 4-Acetyl-phenyl                                     | ortho    | 160-162°C     |  |
| 14   | 4-(1-Methoxyiminoethyl)-<br>phenyl                  | ortho    | 105-107°C     |  |
| 15   | 4-(1-Ethoxyiminoethyl)-<br>phenyl                   | ortho    | 105-107°C     |  |
| 16   | 4-(1-iso-Propyloxyimino-<br>ethyl)-phenyl           | ortho    | 101-103°C     |  |
| 17   | -CH <sub>2</sub> -CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> | ortho    | 73-75°C       |  |
| 18   | 2,2,2-Trifluorethoxy                                | ortho    | 145-147°C     |  |
| 19   | 2,2,3,3,3-<br>Pentafluorpropyloxy                   | ortho    | 99-100°C      |  |

| Bsp.          | X-R <sup>5</sup>    | Position | Festpunkt | Spektroskopische Daten |
|---------------|---------------------|----------|-----------|------------------------|
|               | cyclo-Hexen-3-yl    | ortho    | 87-89°C   |                        |
|               | Phenyl              | ortho    | 86-87°C   |                        |
| \ <del></del> | 4-iso-Propyl-phenyl | ortho    | 89-91°C   |                        |

# Anwendungsbeispiele:

Die Wirkstoffe wurden als Stammlösung aufbereitet mit 0,25 Gew.-% Wirkstoff in Aceton oder Dimethylsulfoxid (DMSO). Dieser Lösung wurde 1 Gew.-% Emulgator Uniperol® EL (Netzmittel mit Emulgier- und Dispergierwirkung auf der Basis ethoxylierter Alkylphenole) zugesetzt und entsprechend der gewünschten Konzentration mit Wasser verdünnt.

10

Wirksamkeit gegen Mehltau an Gurkenblättern verursacht durch Sphaerotheca fuliginea bei protektiver Anwendung

Blätter von in Töpfen gewachsenen Gurkenkeimlingen der Sorte "Chinesische Schlange" wurden im Keimblattstadium mit wässriger Suspension in der unten angegebenen Wirkstoffkonzentration bis zur Tropfnässe besprüht. 20 h nach dem Antrocknen des Spritzbelags wurden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension des Gurkenmehltaus (Sphaerotheca fuliginea) inokuliert. Danach wurden die Versuchspflanzen im Gewächshaus bei Temperaturen zwischen 20 und 24 °C und 60 bis 80 % relativer Luftfeuchtigkeit für 7 Tage kultiviert. Danach wurde das Ausmaß der Mehltauentwicklung visuell in %-Befall der Keimblattfläche ermittelt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 8 zusammengestellt.

Tabelle 8:

| Verbindung aus | Befall der Blattfläche [%]         |  |  |  |
|----------------|------------------------------------|--|--|--|
| Beispiel       | bei 250 ppm Wirkstoffkonzentration |  |  |  |
| 1              | 0                                  |  |  |  |
| 2              | 10                                 |  |  |  |
| 3              | 0                                  |  |  |  |
| 4              | 0                                  |  |  |  |
| 5              | 0                                  |  |  |  |
| 6              | 0                                  |  |  |  |
| 7              | 0                                  |  |  |  |
| 8              | 1                                  |  |  |  |
| 12             | 0                                  |  |  |  |
|                | 0                                  |  |  |  |
| 14             | U U                                |  |  |  |

| 3 | 7 |
|---|---|
| J |   |
|   |   |

| Verbindung aus | Befall der Blattfläche [%]         |
|----------------|------------------------------------|
| Beispiel       | bei 250 ppm Wirkstoffkonzentration |
| 15             | 0                                  |
| 16             | 0                                  |
| 17             | 0                                  |
| 20             | 1                                  |
| 21             | 0                                  |
| 22             | 0                                  |
| unbehandelt    | 90                                 |

Protektive Wirksamkeit gegen Puccinia recondita an Weizen (Weizenbraunrost)

Blätter von in Töpfen gewachsenen Weizensämlingen der Sorte "Kanzler" wurden mit einer wässrigen Suspension in der unten angegebenen Wirkstoffkonzentration bis zur Tropfnässe bestäubt. Am nächsten Tag wurden die behandelten Pflanzen mit Sporen des Weizenbraunrostes (*Puccinia recondita*) bestäubt. Anschließend wurden die Pflanzen für 24 Stunden in eine Kammer mit hoher Luftfeuchtigkeit (90 bis 95 %) und 20 bis 22 °C gestellt. Während dieser Zeit keimten die Sporen aus und die Keimschläuche drangen in das Blattgewebe ein. Am folgenden Tag wurden die Versuchspflanzen ins Gewächshaus zurückgestellt und bei Temperaturen zwischen 20 und 22 °C und 65 bis 70 % relativer Luftfeuchtigkeit für weitere 7 Tage kultiviert. Danach wurde das Ausmaß der Rostpilzentwicklung auf den Blättern visuell ermittelt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 9 zusammengestellt.

Tabelle 9:

| abelle 9.      | Befall der Blattfläche [%]         |
|----------------|------------------------------------|
| Verbindung aus | Bejail del Biattilactic [70]       |
| Beispiel       | bei 250 ppm Wirkstoffkonzentration |
| 4              | 15                                 |
| 10             | 15                                 |
| 11             | 10                                 |
| 14             | 15                                 |
| 16             | 10                                 |
|                | 90                                 |
| unbehandelt    |                                    |

#### Patentansprüche

#### 3-Trifluormethylpicolinsäureanilide der allgemeinen Formel I, 1.

$$R^1$$
 $CF_3$ 
 $R^4$ 
 $X-R^5$ 
 $R^3$ 
 $(I)$ 

worin n für 0, 1, 2, 3 oder 4 steht und die Substituenten die folgende Bedeutung haben:

5

O, S oder direkte Bindung; X

O oder S; W

unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Nitro, CN, C1-C4- $R^{1}, R^{2}, R^{3}$ Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in den 4 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

Wasserstoff, OH, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, wobei  $R^4$ die Wasserstoffatome in den 3 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

unsubstituiertes  $C_4$ - $C_{12}$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_{12}$ -Cycloalkyl,  $C_3$ - $C_{12}$ -Alkenyl,  $C_5$ - $R^5$ 

C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, wobei die 5 letztgenannten Gruppen jeweils 1, 2 oder 3 Substituenten R<sup>9</sup> aufweisen können, und wobei die Wasserstoffatome in den 5 letztgenannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, das 1, 2 oder 3 Substituenten R<sup>11</sup> aufweist,

eine Gruppe -C(R<sup>10</sup>)=NOR<sup>8</sup>, eine Gruppe -C(O)NR<sup>13</sup>R<sup>14</sup>; Phenyl, Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, Phenyl-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkenyl, Phenyl-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>alkinyl, Phenyloxy-C1-C6-alkyl, Phenyloxy-C2-C6-alkenyl, Phenyloxy-C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-alkinyl, wobei der Alkyl-, Alkenyl- und der Alkinyl-Teil in den 6 zuletzt genannten Gruppen 1, 2, 3 oder 4 Substituenten R<sup>11</sup> aufweisen kann und der Phenylring in den 7 zuletzt genannten Gruppen 1, 2, 3 oder 4 Reste R<sup>7</sup> tragen kann;

die für R¹ genannten, von Wasserstoff verschiedenen Bedeutungen; R<sup>6</sup>

10

15

20

25

30

|    | R <sup>7</sup>  | C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> - Cycloalkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkenyl, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> - |
|----|-----------------|---|
|    | 1               | Alkenyloxy, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkinyl, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkinyloxy, wobei die Wasserstoff-   |
|    |                 | atome in diesen 7 Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen  |
|    |                 | substituiert sein können, OH, Halogen, Nitro, CN, C1-C4-Alkylthio, C1-  |
| 5  |                 | C <sub>4</sub> -Alkylsulfonyl, -C(O)R <sup>12</sup> , NR <sup>13</sup> R <sup>14</sup> , -C(O)NR <sup>13</sup> R <sup>14</sup> , -C(S)NR <sup>13</sup> R <sup>14</sup> ,                              |
|    |                 | -C(R <sup>10</sup> )=NOR <sup>8</sup> , Phenyl, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R <sup>6</sup> genannten   |
|    |                 | Gruppen aufweisen kann, Phenoxy, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R <sup>6</sup>  |
|    |                 | genannten Gruppen aufweisen kann, C <sub>1</sub> -C <sub>6</sub> -Alkyl-Phenyl, wobei die   |
|    |                 | Wasserstoffatome des Alkylteils teilweise oder vollständig durch Ha-  |
| 10 |                 | logen substituiert sein können und der Phenylring 1, 2, 3 oder 4 der  |
|    |                 | unter R <sup>6</sup> genannten Gruppen aufweisen kann,  |
|    |                 | wobei zwei an benachbarte Kohlenstoffatome gebundene Reste R'   |
|    |                 | auch für CH=CH-CH=CH oder eine Alkylenkette mit 3 bis 5 Gliedern  |
|    |                 | stehen können, worin 1 oder 2 nicht benachbarte CH <sub>2</sub> -Gruppen auch   |
| 15 |                 | durch Sauerstoff oder Schwefel ersetzt sein können und worin ein  |
| 10 |                 | Teil oder alle Wasserstoffe durch Halogen ersetzt sein können;  |
|    | R <sup>8</sup>  | C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> - Cycloalkyl, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkenyl, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkinyl, wobei die                       |
|    |                 | Wasserstoffatome in diesen 4 Gruppen teilweise oder vollständig   |
|    |                 | durch Halogen substituiert sein können,   |
| 20 |                 | Phenyl oder Phenyl-C₁-C₀-alkyl, wobei Phenyl in den zwei letztge-   |
|    |                 | nannten Resten 1, 2, 3 oder 4 der unter R <sup>6</sup> genannten Gruppen auf-   |
|    |                 | weisen kann;  |
|    | $R^9$           | $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, $C_1$ - $C_8$ -Alkoxy, $C_2$ - $C_8$ -Alkenyloxy, $C_2$ - $C_8$ -Alkinyloxy, $C_1$ - $C_4$ -  |
|    |                 | Alkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in diesen Gruppen   |
| 25 |                 | teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;  |
|    | $R^{10}$        | Wasserstoff, Halogen, C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -Alkoxy, C <sub>2</sub> -C <sub>8</sub> -Alkenyloxy, C <sub>2</sub> -C <sub>8</sub> -  |
|    |                 | Alkinyloxy, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -alkoxy, C <sub>1</sub> -C <sub>12</sub> -Alkyl, C <sub>3</sub> -C <sub>12</sub> -                                  |
|    |                 | Cycloalkyl, C <sub>2</sub> -C <sub>12</sub> -Alkenyl, C <sub>5</sub> -C <sub>12</sub> -Cycloalkenyl, C <sub>3</sub> -C <sub>12</sub> -Cycloalkyl-C <sub>1</sub> -                                     |
|    |                 | C <sub>4</sub> -alkyl, wobei die Wasserstoffatome in den 9 zuletzt genannten  |
| 30 |                 | Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein  |
|    |                 | können;   |
|    |                 | Phenyl, das 1, 2, 3 oder 4 der unter R <sup>7</sup> genannten Gruppen aufwei-   |
|    |                 | sen kann,   |
|    | R <sup>11</sup> | Halogen, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -Alkoxy, C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -Alkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -alkoxy, C <sub>2</sub> -               |
| 35 |                 | C <sub>8</sub> -Alkenyloxy, C <sub>2</sub> -C <sub>8</sub> -Alkinyloxy, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>8</sub> -alkoxy, wobei  |
|    |                 | die Wasserstoffatome in diesen Gruppen teilweise oder vollständig   |
|    | 4.5             | durch Halogen substituiert sein können;   |
|    | R <sup>12</sup> | Wasserstoff, OH, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkenyl, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -                             |
|    |                 | Alkinyl, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkenyloxy, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkinyloxy, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -                              |
| 40 |                 | alkoxy, wobei die Wasserstoffatome in den 7 zuletzt genannten   |
| 40 |                 | alkoxy, wobel die wasserstollatorile in den 7 zuletzt gen   |

5

15

35

40

Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

R<sup>13</sup>, R<sup>14</sup> unabhängig voneinander Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in diesen Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können;

und die landwirtschaftlich brauchbaren Salze von I.

- Anilide der allgemeinen Formel I nach Anspruch 1, worin R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl bedeuten.
  - 3. Anilide der allgemeinen Formel I nach Anspruch 1, worin R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> jeweils für Wasserstoff stehen.
  - 4. Anilide der allgemeinen Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, worin R<sup>4</sup> ausgewählt ist unter Wasserstoff, Methyl, OH oder Methoxy.
- 5. Anilide der allgemeinen Formel I nach Anspruch 4, worin R<sup>4</sup> für Wasserstoff steht.
  - Anilide der allgemeinen Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, worin R<sup>5</sup> eine der folgenden Bedeutungen aufweist:
- unsubstituiertes C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in den 4 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können und die Wasserstoffatome in C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl teilweise oder vollständig durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiert sein können,
- C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl;
  - Phenyl, Phenyl-C₁-C₆-alkyl, wobei der Phenylring mit 1, 2, 3 oder 4 Resten R<sup>7</sup> substituiert sein kann; oder
  - -C(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl)=NO-R<sup>8</sup>, wobei die Wasserstoffatome der C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylgruppe teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können.
  - 7. Anilide der allgemeinen Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, in denen R<sup>6</sup> die folgenden Bedeutungen aufweist C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, wobei diese Gruppen durch Halogen substituiert sein können, oder Halogen.

PCT/EP2004/014621

- 8. Anilide der allgemeinen Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, in denen n = 0 ist.
- 9. Anilide der allgemeinen Formel I nach Anspruch 9, worin R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> jeweils
   für Wasserstoff stehen und die Gruppe X-R<sup>5</sup> in ortho- oder meta-Position zum Amidstickstoff gebunden ist.
  - Anilide der allgemeinen Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, in denen X eine direkte Bindung oder Sauerstoff bedeutet.
- 10
   11. Anilide der allgemeinen Formel I nach Anspruch 10, in denen die Gruppe X für Sauerstoff oder eine direkte Bindung steht und R<sup>5</sup> eine der folgenden Bedeutungen aufweist:
- unsubstituiertes C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkinyl, wobei die Wasserstoffatome in den 4 zuletzt genannten Gruppen teilweise oder vollständig durch Halogen substituiert sein können und die Wasserstoffatome in C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl teilweise oder vollständig durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiert sein können;
- 20 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl;
  - Phenyl, Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkyl, wobei der Phenylring mit 1, 2, 3 oder 4 Resten
     R<sup>7</sup> substituiert sein kann; oder

  - 12. Verwendung von 3-Trifluormethylpicolinsäureaniliden der allgemeinen Formel I und ihren landwirtschaftlich verträglichen Salzen gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche zur Bekämpfung von Schadpilzen.
- Fungizide Mittel, enthaltend eine fungizid wirksame Menge mindestens eines 3 Trifluormethylpicolinsäureanilids der allgemeinen Formel I oder eines landwirtschaftlich verträglichen Salzes von I gemäß einem der Ansprüche 1 bis 11.
- Verfahren zur Bekämpfung von Schadpilzen, dadurch gekennzeichnet, dass man die Schadpilze, deren Lebensraum oder die von ihnen freizuhaltenden Pflanzen, Flächen, Materialien oder Räume mit mindestens einer fungizid wirksamen Menge eines 3-Trifluormethylpicolinsäureanilids der allgemeinen Formel I oder eines landwirtschaftlich verträglichen Salzes von I gemäß einem der Ansprüche 1 bis
   11 behandelt.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/EP2004/014621

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 CO7D213/81 A01N A01N43/40

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

#### **B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) CO7D A01N IPC 7

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ, CHEM ABS Data

|            | ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT  Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|------------|--|-----------------------|
| Category ° | CHRIGH of pocument, was a series   |                       |
| X          | WO 02/096882 A1 (NIHON NOHYAKU CO., LTD) 5 December 2002 (2002-12-05) claims 1-3,5-7; compounds 3-1 & EP 1 400 516 A (NIHON NOHYAKU CO., LTD) 24 March 2004 (2004-03-24)                     | 1-14                  |
| X          | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 007, no. 195 (C-183), 25 August 1983 (1983-08-25) & JP 58 096069 A (ISHIHARA SANGYO KK), 7 June 1983 (1983-06-07) cited in the application the whole document | 1-14                  |
| х          | EP 0 545 099 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 9 June 1993 (1993-06-09) cited in the application claims 2,7; compounds 1.75, 1.76  | 1-14                  |

Further documents are listed in the continuation of box C. X "T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but sized to understand the principle or theory underlying the Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "E" earlier document but published on or after the international filing date

\*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

document published prior to the international filling date but later than the priority date claimed \*&\* document member of the same patent family

Date of mailing of the International search report Date of the actual completion of the international search

15/04/2005 8 April 2005 Authorized officer Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016 Stroeter, T

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2004/014621

|           |   | PCT/EP2004/014621 |              |
|-----------|---|-------------------|--------------|
|           | tion) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT   |                   |              |
|           | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevan           | to claim No. |
| ategory ° | WO 03/074491 A (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG; EHRENFREUND, JOSEF; TOBLER, HANS; WALTER,) 12 September 2003 (2003-09-12) cited in the application Verbindungen mit R4 = CF3 page 10; table 5 | 1                 | -14          |
|           | cited in the application Verbindungen mit R4 = CF3 page 10; table 5   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
| ·         |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |
|           |   |                   |              |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP2004/014621

|  |  |                  | 101/1120  |   | 04/ 014021   |  |
|--|--|------------------|---|---|--|--|
| Patent document cited in search report | <del>-                                    </del> | Publication date |   | Patent family member(s)   | Publication<br>date  |  |
| WO 02096882                            | A1   | 05-12-2002       | BR<br>CA<br>CN<br>EP<br>JP<br>US  | 0209726 A<br>2447640 A1<br>1512986 A<br>1400516 A1<br>2003048878 A<br>2004116744 A1   | 20-04-2004<br>05-12-2002<br>14-07-2004<br>24-03-2004<br>21-02-2003<br>17-06-2004   |  |
| EP 1400516                             | <br>А  | 24-03-2004       | BR<br>CA<br>EP<br>US<br>CN<br>WO<br>JP  | 0209726 A<br>2447640 A1<br>1400516 A1<br>2004116744 A1<br>1512986 A<br>02096882 A1<br>2003048878 A  | 20-04-2004<br>05-12-2002<br>24-03-2004<br>17-06-2004<br>14-07-2004<br>05-12-2002<br>21-02-2003   |  |
| JP 58096069                            | Α  | 07-06-1983       | NONE  |   |  |  |
| EP 0545099                             | A  | 09-06-1993       | AT<br>AU<br>CA<br>CZ<br>DE<br>DE<br>ES<br>HU<br>JP<br>JP<br>KNZ<br>US<br>US<br>ZA | 149487 T 656243 B2 2855492 A 2081935 A1 9203448 A3 289478 B6 59208113 D1 545099 T3 0545099 A2 2098421 T3 3023336 T3 62861 A2 103614 A 3202079 B2 5221994 A 2001253802 A 2001316210 A 267518 B1 245194 A 296677 A1 344892 A3 5480897 A 5556988 A 5589493 A 5330995 A 9208977 A | 15-03-1997 27-01-1995 27-05-1993 23-05-1993 13-10-1993 16-01-2002 10-04-1997 24-03-1997 09-06-1993 01-05-1997 28-06-1993 24-09-1998 27-08-2001 31-08-1993 18-09-2001 13-11-2001 16-10-2000 27-02-1996 18-10-1993 08-03-1995 02-01-1996 31-12-1996 19-07-1994 |  |
| WO 03074491                            | A  | 12-09-2003       | AU<br>BR<br>CA<br>EP<br>WO  | 2003208490 A1<br>0308230 A<br>2477931 A1<br>1480955 A1<br>03074491 A1   | 16-09-200<br>28-12-200<br>12-09-200<br>01-12-200<br>12-09-200  |  |

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

ationales Aktenzeichen PCT/EP2004/014621

a. klassifizierung des anmeldungsgegenstandes IPK 7 C07D213/81 A01N43/40

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

#### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchlerter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  $IPK\ 7\ C07D\ A01N$ 

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ, CHEM ABS Data

| (ategorie° | SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X          | WO 02/096882 A1 (NIHON NOHYAKU CO., LTD) 5. Dezember 2002 (2002-12-05) Ansprüche 1-3,5-7; Verbindungen 3-1 & EP 1 400 516 A (NIHON NOHYAKU CO., LTD) 24. März 2004 (2004-03-24)               | 1-14               |
| X          | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 007, Nr. 195 (C-183), 25. August 1983 (1983-08-25) & JP 58 096069 A (ISHIHARA SANGYO KK), 7. Juni 1983 (1983-06-07) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument | 1-14               |
| Χ .        | EP 0 545 099 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 9. Juni 1993 (1993-06-09) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 2,7; Verbindungen 1.75, 1.76  | 1-14               |

|  | tere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu<br>lehmen   | X Slehe Anhang Patentfamilie  |
|--|--|---|
| ° Besonden "A" Veröffe aber r "E" älteres Anme "L" Veröffe scheil ander soll o ausge "O" Veröffe | e Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :<br>intlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert,<br>nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist | werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen<br>Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und<br>diese Verbindung für einen Fachmann nahellegend ist<br>"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist |
| Datum des  | Abschlusses der Internationalen Recherche  | Absendedatum des internationalen Recherchenberichts   |
|  | 3. April 2005  | 15/04/2005  |
|  | Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  | Bevollmächtigter Bediensteter   |
| Hamb One   | Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2<br>NL – 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl,<br>Fax: (+31–70) 340–3016                  | Stroeter, T   |

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Interactionales Aktenzeichen
PCT/EP2004/014621

|            | ·   | PCT/EP2004/ | 011021           |
|------------|---|-------------|------------------|
| (Fortsetzu | ing) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN   | 1 T-11-     | tr. Anspruch Nr. |
| (ategorie° | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommend  | ien Teile   | u. Anspiden Ni.  |
| <b>(</b>   | WO 03/074491 A (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG; EHRENFREUND, JOSEF; TOBLER, HANS; WALTER,) 12. September 2003 (2003-09-12) in der Anmeldung erwähnt Verbindungen mit R4 = CF3 Seite 10; Tabelle 5 |             | 1–14             |
|            |   |             |                  |
|            |   |             | ,                |
|            |   |             |                  |
|            |   |             |                  |
|            |   |             |                  |
|            |   |             |                  |

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/014621

| lm Recherchenbericht<br>angeführtes Patentdokument |    | Datum der<br>Veröffentlichung |          | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie | Datum der<br>Veröffentlichung |
|--|----|-------------------------------|----------|-----------------------------------|-------------------------------|
|  | A1 | 05-12-2002                    | BR       | 0209726 A                         | 20-04-2004                    |
| WO 02096882  | ΥI | 03 IL 200L                    | CA       | 2447640 A1                        | 05-12-2002                    |
|  |    |                               | CN       | 1512986 A                         | 14-07-2004                    |
|  |    |                               |          | 1400516 A1                        | 24-03-2004                    |
|  |    |                               | EP       |                                   | 21-02-2003                    |
|  |    |                               | JP       | 2003048878 A                      |                               |
|  |    |                               | US       | 2004116744 A1                     | 17-06-2004                    |
| EP 1400516   |    | 24-03-2004                    | BR       | 0209726 A                         | 20-04-2004                    |
| CL 1400210   | М  | L. 00 200.                    | CA       | 2447640 A1                        | 05-12-2002                    |
|  |    |                               | EP       | 1400516 A1                        | 24-03-2004                    |
|  |    |                               | บร       | 2004116744 A1                     | 17-06-2004                    |
|  |    |                               | CN       | 1512986 A                         | 14-07-2004                    |
|  |    |                               | WO       | 02096882 A1                       | 05-12-2002                    |
|  |    |                               |          | 2003048878 A                      | 21-02-2003                    |
|  |    |                               | JP       |                                   |                               |
| JP 58096069  | Α  | 07-06-1983                    | KEIN     | E .                               |                               |
| EP 0545099   | A  | 09-06-1993                    | ΑT       | 149487 T                          | 15-03-1997                    |
| EL 0242033   | ~  | <i></i>                       | ΑÜ       | 656243 B2                         | 27-01-1995                    |
|  |    |                               | AU       | 2855492 A                         | 27-05-1993                    |
|  |    |                               | CA       | 2081935 A1                        | 23-05-1993                    |
|  |    |                               | CZ       | 9203448 A3                        | 13-10-1993                    |
|  |    |                               | CZ       | 289478 B6                         | 16-01-2002                    |
|  |    |                               | DE       | 59208113 D1                       | 10-04-1997                    |
|  |    |                               |          | 545099 T3                         | 24-03-1997                    |
|  |    |                               | DK       |                                   | 09-06-1993                    |
|  |    |                               | EP       |                                   | 01-05-1997                    |
|  |    | •                             | ES       | 2098421 T3                        | 29-08-1997                    |
|  |    |                               | GR       | 3023336 T3                        |                               |
|  |    |                               | HU       | 62861 A2                          | 28-06-1993                    |
|  |    | ·                             | IL       | 103614 A                          | 24-09-1998                    |
|  |    |                               | JP       | 3202079 B2                        | 27-08-2001                    |
|  |    |                               | JP       | 5221994 A                         | 31-08-1993                    |
|  |    |                               | JР       | 2001253802 A                      | 18-09-2001                    |
|  |    |                               | JP       | 2001316210 A                      | 13-11-2001                    |
|  |    |                               | KR       | 267518 B1                         | 16-10-2000                    |
|  |    |                               | NZ       | 245194 A                          | 27-02-1996                    |
|  |    |                               | PL       | 296677 A1                         | 18-10-1993                    |
|  |    |                               |          |                                   | 08-03-1995                    |
|  |    |                               | SK       | 344892 A3                         | 02-01-1996                    |
|  |    |                               | US       | 5480897 A                         | 17-09-1996                    |
|  |    |                               | US       | 5556988 A                         |                               |
|  |    |                               | US       | 5589493 A                         | 31-12-1996                    |
|  |    |                               | US       | 5330995 A                         | 19-07-1994                    |
|  |    |                               | ZA       | 9208977 A                         | 19-05-1994                    |
| WO 03074491  | A  | 12-09-2003                    | AU       | 2003208490 A1                     | 16-09-2003                    |
| MO 02014421  | ~  | 12 03 2000                    | BR       | 0308230 A                         | 28-12-2004                    |
| •  |    |                               | CA       | 2477931 A1                        | 12-09-2003                    |
|  |    |                               | EP       | 1480955 A1                        | 01-12-2004                    |
|  |    |                               |          | 17UUJJJ 111                       |                               |
|  |    |                               | MO<br>T: | 03074491 A1                       | 12-09-2003                    |

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

| BLACK BORDERS   |
|---|
| ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES               |
| ☐ FADED TEXT OR DRAWING                               |
| ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING                |
| ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES                               |
| ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS                |
| ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS                                |
| LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT                   |
| REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY |
| OTHER:  |

### IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.